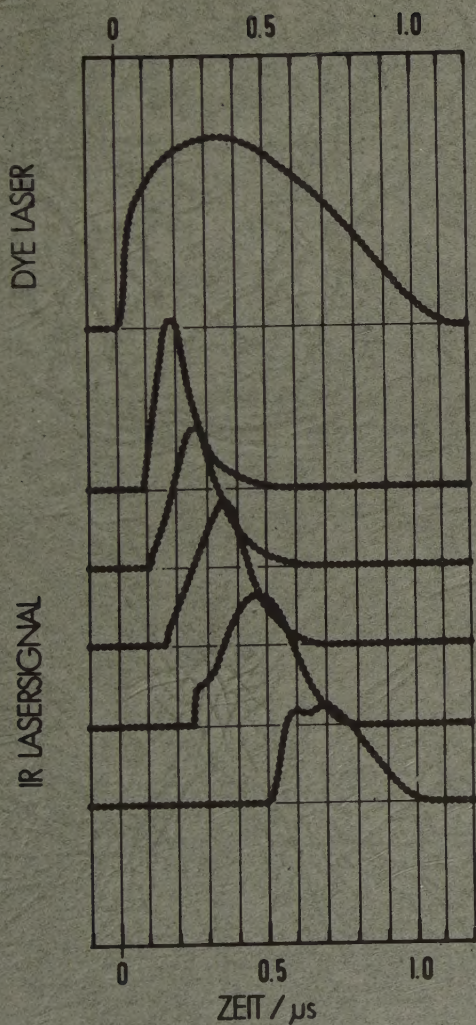
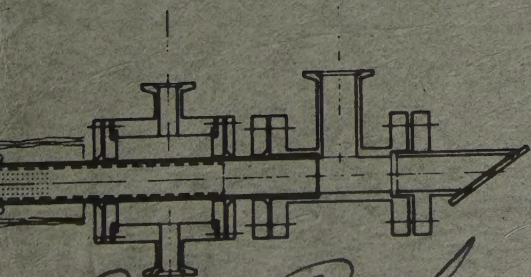




GEPULSTE
INFRAROT-
LASEREMISSION
IN
OPTISCH
GEPUMPTEM
NATRIUMDAMPF



WERNER MÜLLER

Diss. Berlin 1983



GEPULSTE INFRAROT - LASEREMISSION IN OPTISCH GEPUMPTEM NATRIUMDAMPF

INAUGURAL - DISSERTATION

zur Erlangung der Doktorwürde
der Freien Universität Berlin
Fachbereich Physik

vorgelegt von
Werner Müller
aus Liebsthal / Pfalz

1983

GEPUßTE INFRAROT - LASEREMMISSION IM
OPTISCH GEPUßTEM NACHSCHLAGE

REAGIERAL - PRESENTATION
zur Erhebung der Gutachten
der Fachkommission
Fachbereich Physik

1. Gutachter: Prof. Dr. I.V.Hertel

2. Gutachter: Prof. Dr. H.Baumgärtel

Tag der letzten mündlichen Prüfung: 3.8.83

MEINER FAMILIE

Im Rahmen dieser Arbeit wurde bereits veröffentlicht:

- (i) W.Müller, I.V.Hertel: Infrared Laser Emission In Two-Photon Pumped Sodium Vapour, Appl. Phys. 24 (1981) 33 - 38
- (ii) W.Müller, J.J.McClelland, I.V.Hertel: Infrared Laser Emission Study In A Resonantly Excited Sodium Vapour, Appl. Phys. B 31 (1983) 131 - 134
- (iii) W.Müller, I.V.Hertel: Infrared Laser Emission In Atomic Sodium Pumped By Collision Assisted Laser Excitation, Opt. Com. 45 (1983) 400 - 403

1.	EINLEITUNG	1
2.	APPARATUR	6
2.1	Natriumdampf-Laserzelle	6
2.1.1	Heatpipeofen, Prinzip	6
2.1.2	Konstruktion der Natrium-Heatpipeöfen	13
2.1.3	Vakuum- und Gaseinlaßsystem	17
2.1.4	Betrieb, Eigenschaften der Öfen	19
2.1.4.1	Dampfdruckkurve von Natrium	19
2.1.4.2	Druckbereich der Öfen	21
2.1.4.3	Besondere Funktionsweisen	21
2.1.4.4	Beladen, Start, Lebensdauer	22
2.1.4.5	Temperaturmessung, Temperaturprofile, Dampflängen	24
2.2	Blitzlampengepumpter Dylaser	29
2.3	Optikaufbau	35
2.3.1	Infrarot Laserresonatoren	35
2.3.2	Optischer Nachweis	39
2.3.2.1	IR Detektor	41
2.3.2.2	Detektoren im sichtbaren Spektralbereich	43
2.3.2.3	Monochromatoren, Interferenzfilter, Strahlabschwächer	45
2.4	Signalaufnahme, Meßtechniken	47
2.4.1	Zeitstudien	47
2.4.2	Spektrale Untersuchungen	51
3.	GRUNDLAGEN DER LASEREXPERIMENTE	56
3.1	Anregung auf den Na D-Linien	56
3.1.1	Sättigungsphänomene beim resonanten Pumpen	61
3.1.1.1	Zwei-Zustandssystem, Sättigung im Fall eines einzelnen Atoms	61
3.1.1.2	Stahlungstransfergleichung, Sättigung im Vielteilchenfall	63

3.1.2	Anregung auf den Flügeln der Absorptionslinie	66
3.1.3	Äquivalente Breite	71
3.1.4	'Radiation Trapping'	73
3.2	Selektive Anregung von höheren Zuständen im Natrium	79
3.2.1	'Energy Pooling'-Stöße zwischen zwei angeregten Atomen	79
3.2.2	Direkte Zweiphotonenanregung im Atom	87
3.2.3	Stoßinduzierte Zweistufenanregung im Atom	93
3.2.4	Zweiphotonenabsorption im Molekül	101
3.3	Andere Prozesse in optisch gepumptem Na Dampf	102
3.4	Lasermodelle	115
3.4.1	Stationärer Fall; Schwellenbesetzungsinversion, Schwellenpumprate	115
3.4.2	Dynamischer Fall	121
3.4.2.1	'Energy Pooling'-Lasermodell	121
3.4.2.1.1	Vereinfachende Annahmen	122
3.4.2.1.2	Ratengleichungen für $5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ Lasertätigkeit	127
3.4.2.1.3	Rechnerprogramm	130
3.4.2.1.4	'Radiation Trapping' und B_I im Programm	132
3.4.2.1.5	Zusätzliche Prozesse und andere Laserübergänge	136
3.4.2.2	Lasermodelle für Zweiphotonenpumpen	141
4.	EXPERIMENTELLE ERGEBNISSE, VERGLEICH MIT MODELLEN, DISKUSSION	145
4.1	IR Laseremission im Natriumatom	148
4.1.1	Zweiphotonengepumpte IR Lasertätigkeit	149
4.1.1.1	Ergebnisse; $5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$, $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ Lasertätigkeit	149
4.1.1.2	Modellergebnisse, Diskussion	159
4.1.1.3	Ergebnisse, $4d - 4p$ Lasertätigkeit	169
4.1.2	IR Lasertätigkeit nach stoßinduzierter Zweistufenanregung von $5s_{1/2}$, Ergebnisse, Diskussion	175

4.1.3	IR Lasertätigkeit ($5s_{1/2} - 4p_{3/2}$) nach 'Energy Pooling'-Pumpprozeß	183
4.1.3.1	Erste Experimente, Anregungs- und Trans- missionspektren	183
4.1.3.2	Detaillierte Untersuchung des Laser- prozesses	192
4.1.3.3	Modellergebnisse	209
4.1.3.4	Ionisation, Diskussion	218
4.2	IR Laseremission im Natriummolekül, Ergebnisse, Diskussion	225
5.	ZUSAMMENFASSUNG	233
ANHANG		239
A1	Fortran-Programm eines Lasermodells (Version 1, Tab.3.6)	240
A2	Relaxationsschwingungen im Experiment	244
A3	IR Fluoreszenzstudien	245
A3.1	IR Fluoreszenz nach stoßinduzierter Zwei- stufenanregung von $5s_{1/2}$	245
A3.2	IR Fluoreszenz nach Anregung auf dem nahen Flügel der Na D_1 -Linie	251
A4	$5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Lasertätigkeit bei Pumpwellen- längen zwischen 582 und 584.5 nm	260
A5	For the english speaking reader	

LITERATURVERZEICHNIS

1. EINLEITUNG

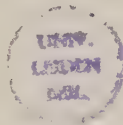
Optisches Pumpen von Atomen und Molekülen in der Gasphase mit bekannten Laserquellen gewinnt seit nunmehr einem Jahrzehnt in steigendem Maße als effiziente Technik zur Erzeugung von kohärenter Strahlung im infraroten Spektralbereich an Bedeutung. Dabei müssen im wesentlichen zwei Bedingungen erfüllt sein: die Verfügbarkeit von leistungsstarken Pumplasern und die gute Übereinstimmung zwischen Pumpwellenlänge und Absorptionslinie des zu pumpenden Gases.

Insbesondere mit der Entwicklung von intensiven abstimmbaren Lichtquellen, wie beispielsweise dem Farbstofflaser Anfang der 70er Jahre, wurden Möglichkeiten eröffnet, die es erlauben die Vorteile des optischen Pumpens, nämlich hohe Selektivität des Pumpprozesses, gute Vorhersagbarkeit der Laserprozesse sowie Überschaubarkeit der im aktiven Medium ablaufenden Konkurrenzprozesse, voll auszunutzen.

Damit war die Möglichkeit gegeben diesem Prinzip, auf dem das erste von Schawlow und Townes vorgeschlagene Lasersystem überhaupt beruhte /STo 58/, nach anfänglichen Durchsetzungsschwierigkeiten, die im wesentlichen zu Beginn der 60er Jahre auf ineffizienten Anregungsmethoden durch inkohärente Pumpstrahlung beruhten, zum Durchbruch zu verhelfen.

Mögliche grundlegende Energieniveauschemata zur Erzeugung einer Besetzungsinversion durch optisches Pumpen sind in Abb. 1.1 zu erkennen.

Das einfachste Prinzip ist ein Dreiniveaulasersystem. Dabei wird die Besetzungsinversion zwischen oberem und unterem Laserniveau u und l durch direktes Pumpen der Atome oder Moleküle aus dem Grundzustand g in den oberen Laserzustand u erzielt (Abb. 1.1.a). Denkbar ist aber auch eine Anregung des oberen Laserzustandes durch Mehrstufen- oder Mehrphoto-nenprozesse. In Abb. 1.1.b ist beispielsweise ein Vierniveaulasersystem zu erkennen, in welchem die Grundzustandsatome oder



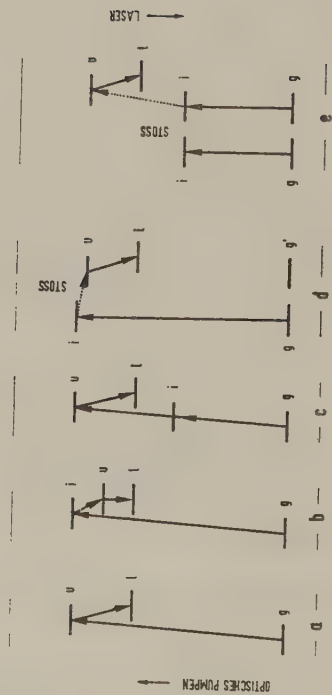


Abb. 1.1: Optisch gepumpte Laserschemata.

-moleküle zunächst optisch in einen Zustand i gepumpt werden, der dann durch Strahlung oder strahlungslos in den oberen Laserzustand u zerfällt. Ist dieser Strahlungsübergang selbst ein Laserübergang, so handelt es sich bei dem Laserübergang von u nach l um einen Kaskadenlaserübergang. Abb. 1.1.c zeigt als Beispiel für einen Mehrphotonenprozeß die Anregung des oberen Laserzustandes über einen Zweiphotonenpumpprozeß, bei welchem ein möglicher Zwischenzustand nicht notwendigerweise in Resonanz mit der Pumplaserstrahlung sein muß. Ebenfalls denkbar ist ein optisch gepumptes Energietransferschema, wie in Abb. 1.1.d gezeigt. Dabei kann die eigentliche Anregung des oberen Laserzustandes durch einen inelastischen Stoßprozeß nach optischem Pumpen eines nahezu energetisch resonanten Zustandes in einem anderen Atom oder Molekül geschehen. Auch bei solchen Prozessen können einzelne Niveaus selektiv besetzt werden. Die Stoßprozesse können zwischen verschiedenen und gleichen Atomen und Molekülen stattfinden /PWL 76, PLe 81/.

Ursprünglich sollte der Akzent dieser Arbeit auf der Erzeugung von Besetzungsinversionen in Molekülen nach dem Transfer elektronischer Energie von optisch gepumptem Alkalimetall- dampf in Schwingungs- und Rotationsenergie von Molekülen /Her 81/ liegen. Im Verlauf dieser Untersuchungen zeigte sich jedoch, daß die hohe Reaktivität der Alkaliatome mit jedem der ins Auge gefaßten molekularen Partner enge Grenzen setzt. Andererseits erwiesen sich die in reinem Natriumdampf ablaufenden Prozesse als so vielseitig und interessant, daß ausschließlich sie im eigentlichen Teil dieser Arbeit untersucht wurden.

Erstmalig wird dabei über die Ausnutzung von Energietransferpumpmechanismen zwischen zwei optisch angeregten Natrium- atomen zur Erzeugung von Laserstrahlung berichtet (Laserschema in Abb. 1.1.e). Andere in der Arbeit vorgestellte Laserprozesse im Natriumdampf basieren auf dem zweiphotonengepumpten Laserschema (Abb. 1.1.c), wobei zum erstenmal auch über eine Lasertätigkeit berichtet wird, die über eine stoßinduzierte

optische Zweistufenanregung abläuft.

Optisches Pumpen ist besonders attraktiv in Lasersystemen, die auf elektronischen Übergängen beruhen. Historisch, wie auch in jüngster Zeit, spielen dabei Alkalimetalldämpfe wegen der bekannten hohen Oszillatorenstärken, aber auch wegen ihrer leichten Handhabbarkeit, eine große Rolle:

So wiesen schon Schawlow und Townes in ihrem Originalvorschlag zur Erzeugung von IR und sichtbarer Laserstrahlung auf das optische Pumpen von atomaren Alkalimetalldämpfen hin. Mittlerweile haben nach Berichten über optisch gepumpte IR Lasertätigkeit in atomarem Cäsium, Rubidium und Kalium /RJG 62, SLA 71, SBL 81/, vor allem die Alkalidimere ihre Tauglichkeit als effiziente Lasermedien im sichtbaren und nahen IR Spektralbereich bewiesen /HHB 76, IUM 76, Wel 79, BRV 82/. Daneben werden verschiedene nichtlineare Prozesse, wie stimulierte Ramaneffekt und optisch parametrische Mischprozesse /WSo 77, HYC 79/, im Zusammenhang mit Alkaliatomen als leistungsfähige Mittel zur Konversion von sichtbarem Licht in kohärente IR Strahlung benutzt. Obwohl Alkaliatome zu den wohl meist untersuchten Objekten in der Atomphysik gehören /SKo 80/ (Stichwort: 'sichtbares' Wasserstoffatom), wurde im Fall von Natrium lediglich über Superfluoreszenz /GFP 76/ und optisch stimulierte Emission /CHT 77, Har 78/ zwischen höheren Zuständen berichtet.

Ein Ziel dieser Arbeit ist es deshalb, Möglichkeiten zur Realisierung optisch gepumpter Laserschemata im Natriumdampf aufzuzeigen und dabei unter anderem an Bemühungen /HFO 82, LBR 76/ teilzunehmen, die in Form von optischem Pumpen in Resonanzzuständen gespeicherte Energie durch Laserstrahlung zu extrahieren.

Im einzelnen sollen sowohl Laserprozesse zwischen höher angeregten Zuständen im Atom als auch im Molekül nach Anregung des in einem Heatspeicher erzeugten Natriumdampfes mit einem blitzlampengepumpten Dye-Laser untersucht werden.

Ein anderer Aspekt dieser Arbeit beruht auf der Einsatzmöglichkeit der erzeugten Lasertätigkeit als diagnostisches Mittel /PLe 80/ zum Studium von Stoßprozessen in dichtem, resonant gepumptem Natriumdampf:

Motiviert durch das Interesse an grundlegenden atomaren und molekularen Prozessen im Zusammenhang mit angeregten Atomen, wird in den letzten Jahren in verstärktem Maße über die Untersuchung des Verhaltens von Metaldämpfen nach resonanter Anregung durch intensive Laser berichtet /KMo 82, LMc 80/. Insbesondere Mechanismen wie 'Energy Pooling' /AAK 76, HGa 83a, ABM 83/, Quenchen /HLi 80, Her 81/, Assoziative Ionisation /KSV 82, HGa 83b, BBW 83/ oder laserinduzierte Stöße /PDW 80, WPo 81, RCB 81/ wurden an solchen Systemen untersucht. Von praktischem Interesse ist die von Lucatorto und McIlrath erstmals beobachtete starke Ionisation eines dichten Natriumdampfes nach resonanter Einstrahlung eines intensiven, gepulsten Dylasers /LMc 76/. Nebenbei bemerkt können auf diesem Weg sehr effizient Strahlungsenergie in das durch die Ionisationsmechanismen erzeugte Plasma fließen.

Measures et al. entwickelten zur Beschreibung dieser Plasma- bildung ein Modell (LIBORS-Modell, siehe /MCS 81/). Jedoch sind die an der Ionisation beteiligten Mechanismen, insbesondere aber die anfängliche Erzeugung von Elektronen noch nicht vollständig verstanden /LMc 80/. Stark diskutiert wird dabei die Rolle von höheren Zuständen, die durch 'Energy Pooling'-Energietransferstoßprozesse zwischen zwei angeregten Atomen gebildet werden können /KSS 80, GLW 82, HGa 83a/.

Eine in dieser Arbeit erstmals vorgestellte, auf diesem Energietransferprozeß aufbauende Lasertätigkeit zwischen höheren Zuständen im Atom soll den Beweis effizienter, selektiver Bevölkering höherer Zustände durch diesen Prozeß vor dem Einsetzen des im wesentlichen auf Elektronenstoßprozessen und Elektronenstoßionisation basierenden weiteren Verlaufs der Ionisation erbringen. Zeitaufgelöstes Studium der beobachteten IR Laseremission dient dazu als diagnostisches Mittel.

● 2. APPARATUR ●

Abb. 2.1 zeigt den typischen Grundaufbau für optisch gepumpte Laserexperimente. Er besteht im wesentlichen aus einem gepulsten Dyelaser, der einen in einem Heatpipeofen erzeugten Natriumdampf optisch anregt, einem Infrarot (IR)-Laserresonator und einem geeigneten Nachweissystem für die resultierende IR Laserstrahlung des Natriumdampfes. Zur Erfassung von auftretenden Signalen, deren zeitlichen Entwicklung sowie zur spektroskopischen Untersuchung werden konventionelle Techniken herangezogen.

Da es sich bei der gesamten Apparatur um einen von Grund auf neuen Aufbau und um die Einführung neuer experimenteller Techniken innerhalb des Forschungsgebietes der Arbeitsgruppe handelt, werden die in der Abbildung gezeigten Komponenten ausführlich beschrieben und diskutiert. Dabei wird zunächst das Prinzip, die Konstruktion und der Betrieb des Natrium-Heatpipeofens beschrieben - Kap. 2.1. Dann werden die Eigenschaften des blitzlampengepumpten Dyelasers diskutiert - Kap. 2.2. In Kap. 2.3 wird auf IR Resonatoren und den gesamten optischen Aufbau mit IR Nachweis eingegangen. Den Schluß dieses Kapitels bildet eine Beschreibung der Signalerfassung - Kap. 2.4.

● 2.1 Natriumdampf-Laserzelle ●

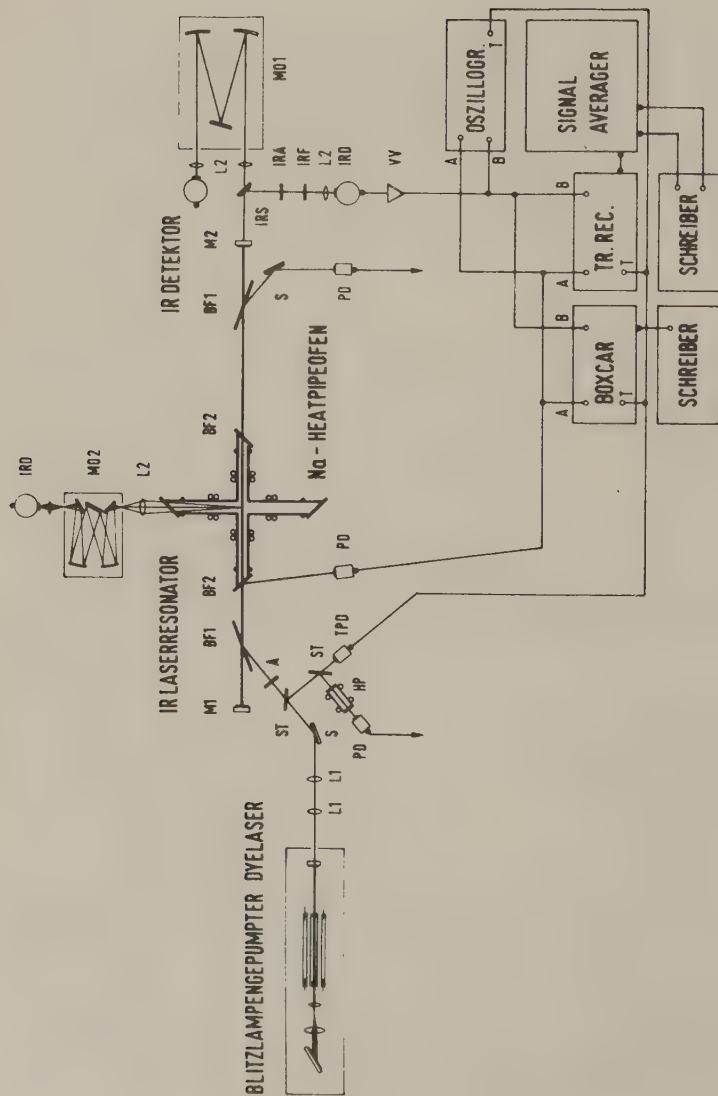
● 2.1.1 Der Heatpipeofen, Prinzip ●

Die Erzeugung von Laserstrahlung in Alkalimetalldämpfen sowie deren spektroskopische Untersuchung verlangt die Konzeption einer geeigneten Hochtemperaturdampfzelle.

Die technischen Anforderungen werden auf einfache Weise durch den Einsatz von Heatpipeöfen erfüllt. Dieser Ofentyp wurde erstmals von Vidal und Cooper /VCo 69, Vid 72/ für spektroskopische Zwecke vorgeschlagen. Die wohl hervorragend-

Abb. 2.1 Typischer experimenteller Grundaufbau (Schema) mit den Hauptkomponenten: Dyelaser, Na-Heatpipeofen, IR Laserresonator, IR Nachweissystem und dem elektronischen Meßsystem.

MO 1: Monochromator	TPD : Triggerphotodiode
Mo 2: Monochromator	M1 : Gold Laserspiegel
S : Kaltlichtspiegel	M2 : Laserauskoppelspiegel
IRS : Goldspiegel	BF 1: Ge Brewsterfenster
ST : Strahlteiler	BF 2: CaF ₂ Brewsterfenster
L1 : Glaslinse	HP : Na Eichheatpipeofen
L2 : CaF ₂ , CdTe Linse	VV : Vorverstärker
A : Abschwächer	T : Triggereingang
IRA : IR Abschwächer	Λ : Eingang A
IRF : IR Filter	B : Eingang B
IRD : IR Detektor	TR.REC.: Transienten Recorder
PD : Photodiode	



ste Eigenschaft der Heatpipe besteht in der, durch das hohe Wärmeleitvermögen /GCE 64, Cot 65/ vorgegebenen Möglichkeit, eine Dampfzone von homogener Dichte und Temperatur zu erzeugen. Ein ausführlicher Überblick über Funktionsweise, Bau und Betrieb ist in /Chi 76, Dre 76, ISY 82/ zu finden.

Der Metалldampf wird - wie in Abb. 2.2 schematisch dargestellt - dadurch optischen Messungen zugänglich gemacht, daß man im einfachsten Fall ein Edelstahlrohr, dessen Mittelteil auf der Innenseite mit einer Dochtstruktur versehen ist, an beiden Enden mit optischen Fenstern ausstattet. Die Mitte des Rohres wird von einer Heizung umgeben. Zu den Enden hin sind jeweils Kühlkörper angebracht, die die Fenster und die zu einem Vakuumsystem führenden Anschlüsse kühlen.

Zum Betrieb der Heatpipe wird das Rohr nach dem Auspumpen mit einem nicht kondensierbaren Gas (z.B. einem Edelgas) gefüllt, dessen Druck von außen konstant gehalten wird. Das Rohr wird in der Mitte (der Verdampfungszone) erwärmt, wodurch die feste Arbeitssubstanz (Natrium) schmilzt, die Dochtstruktur benetzt und verdampft. Dieses Verdampfen geschieht, gemäß seiner Dampfdruckkurve, bis zu einer maximalen Temperatur T_0 des Metалldampfs, die dem Druck p_0 des inerten, nicht kondensierbaren Gases entspricht (siehe Abb. 2.2). Der Partialdruck des Dampfes kann also nie größer werden als der des sogenannten Puffergases. Während und nach dem Erreichen dieser kritischen Werte strömt der Metалldampf zu den gekühlten Enden und kondensiert dort (Kondensationszone). Das flüssige Kondensat wird dann, durch die im Docht wirkenden Kapillarkräfte, wieder zurück in die Verdampfungszone transportiert. Durch die Pumpwirkung des nach außen strömenden Dampfes sind Metалldampf und Edelgas scharf voneinander getrennt (kurze Übergangszone). Der Mittelteil des Heatpipeofens ist also nur mit einem homogenen Metалldampf und die beiden Enden mit dem Puffergas gefüllt (kritischer Betrieb). Die so produzierte Dampfänge ist lediglich eine Funktion der Heizleistung und wird dabei durch das sich einstellende Leistungsgleichgewicht zwischen Heizleistung auf

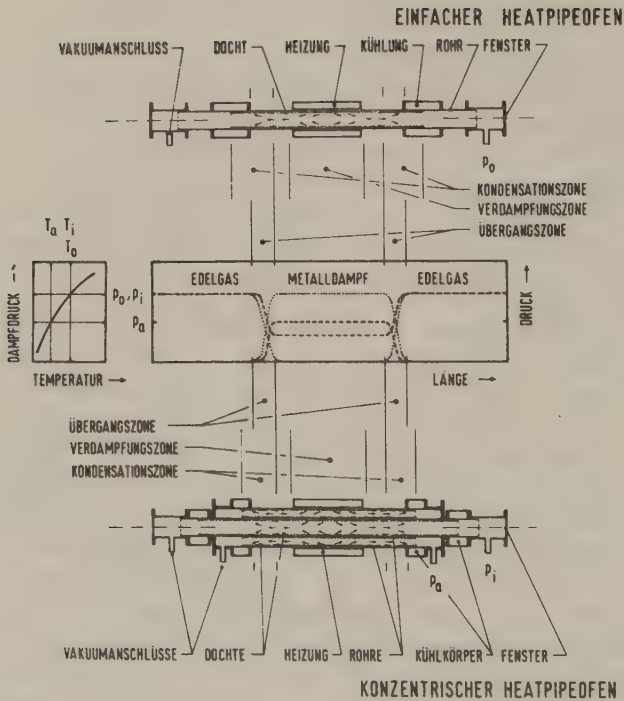


Abb. 2.2: Prinzipieller Aufbau eines einfachen Heatpipeofens (oben) und eines konzentrischen Heatpipeofens (unten). In der Mitte: Funktionsweise der beiden Öfen, angedeutet durch die Dampfdruckkurve des Arbeitsmaterials und die Druckverteilung für den Metall dampf und das nichtkondensierbare Edelgas.
 (..... Kritischer Betrieb des einfachen Heatpipeofens)
 (---- Unterkritischer Betrieb des konzentrischen Heatpipeofens).

der einen Seite und Wärmeleitungsverluste durch Rohrwände, Strahlungsverluste sowie Wärmeableitung durch die Kühlkammern auf der anderen Seite bestimmt.

Als dominierende Eigenschaften der Heatpipe gegenüber konventionellen Ofensystemen sind also folgende Punkte herauszustellen:

- (i) Erzeugung einer homogenen Dampfzone
- (ii) Einstellung des Dampfdruckes der Dampfzone durch den äußeren Edelgasdruck
- (iii) Einstellung der Dampflänge über Variationen der Heizleistung
- (iv) Fernhalten des meist aggressiven Metaldampfes von den optischen Fenstern
- (v) keine Materialverluste (Materialrücktransport durch den Docht).

Vielfältige andere Einsatzmöglichkeiten ergeben sich durch Modifikationen des eben beschriebenen einfachsten Aufbaus /VHa 71, VHe 72/. So besteht zum Beispiel die Möglichkeit, Metaldampf-Gas-Gemische in konzentrischen Heatpipe-öfen zu erzeugen /VHa 71/.

Wie in Abb. 2.2 dargestellt, wird in diesem Fall die Heizung des Heatpipeofens durch einen zweiten Heatpipeofen ersetzt, der um diesen konzentrisch angeordnet ist. Dieser äußere Ofen produziert im kritischen Betrieb, wie oben dargelegt, mit einem vorgegebenen äußeren Puffergasdruck p_a eine homogene Dampfzone mit einer Temperatur T_a . Diese Temperatur wird dem inneren Ofen mit dem zu mischenden Gas mit einem Druck p_i , der größer als der Puffergasdruck p_a der äußeren Heatpipe gewählt werden muß, aufgezwungen. Befindet sich in beiden Öfen das gleiche Arbeitsmaterial, so ist der Partialdruck des Dampfes im inneren Ofen gleich dem Totaldruck p_a des äußeren Ofens. Daraus resultiert ein Puffergaspartialdruck $p_i - p_a$ über die gesamte Dampflänge des inneren Ofens. Der innere Ofen arbeitet also jetzt nicht mehr in der oben beschriebenen kritischen Weise. Man spricht im Gegensatz dazu vom unterkritischen Betrieb.

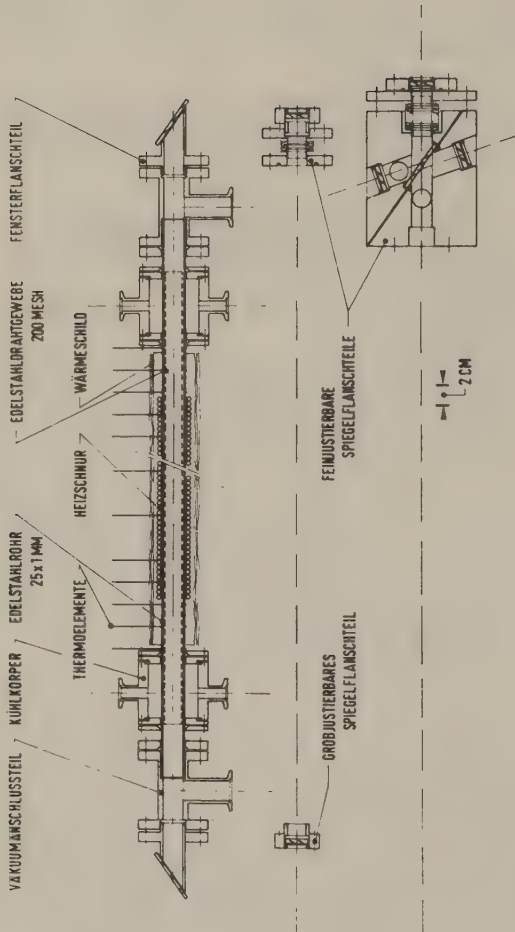


Abb. 2.3: Schnittzeichnung des linearen Heatpipeofens mit
möglichen für den Laserbetrieb notwendigen Brew-
sterfenstern oder justierbaren Spiegelhalterungen.

Beide vorgestellten Ofenarten finden in zweckmäßig abgewandelter Form im Experiment ihre Anwendung.

● 2.1.2 Konstruktion der Natrium-Heatpipeöfen ●

Beim Bau sowie bei der Dimensionierung der im Experiment verwendeten Heatpipe-Typen wird auf in der Literatur beschriebene, schon erprobte Konstruktionen zurückgegriffen /VCo 69, SLA 71, Vid 73/.

Im Hinblick auf gute chemische und thermische Stabilität eignet sich für den Betrieb von Natrium-Heatpipeöfen die Verwendung von rostfreiem Hochtemperaturedelstahlmaterial für Rohr und Docht.

Die eigentliche Dimensionierung des Öfens ist unproblematisch. Folgende Punkte müssen beachtet werden (siehe Abb. 2.2):

- (i) Die Fenster sollten einige cm von den Kühlkörpern entfernt angeordnet sein (Vermeidung möglicher Bedampfung durch Konvektion oder Fehlbedienung)
- (ii) Die erzeugte Dampfänge sollte im Vergleich zu ihrem Durchmesser groß sein (Gewährleistung einer scharfen senkrechten Übergangszone, für Lasertätigkeit erwünscht)
- (iii) Die Heizzone sollte so lang sein, wie die gewünschte Dampfänge in der Heatpipe (Vermeidung von Abweichungen von der kritischen Betriebsweise der Heatpipe vor allem bei kleinen Dampfdrücken /Vid 73/)
- (iv) Der Docht muß bis in die Kühlzone reichen (Materialrücktransport).

Die im Experiment verwendeten Na-Dampfzonen werden in Edelstahlrohren (Werkstoffnr. 4301) mit einem Außendurchmesser von 25 mm und einer Wandstärke von 1-2 mm erzeugt. Als Dochtstruktur werden etwa 5 Lagen eines Edelstahldrahtgewebes (Werkstoffnr. 4301, Maschenweite: 85 µm, Drahtdicke:

40 μm , Fa. Spörl + Co.) verwendet, welches zusammengerollt in das Rohr eingebracht, durch eigene Federkraft an der Innenwand eng anliegt.

Bei den in den Experimenten verwendeten Heatpipe-Typen handelt es sich einmal um die in Abb. 2.3 dargestellte lineare Form, die es in der kritischen Betriebsweise erlaubt, homogene Dampfzonen mit einer Länge von bis zu 30 cm zu erzeugen. Das Ziel ist es hier, einen äußerst flexiblen Aufbau zu realisieren, der einen leichten Zusammenbau, Austausch, sowie vor allem Wiederverwendung der Rohre, Flanschteile, Kühlkörper und Fenster erlaubt. Daneben soll dieser Aufbau verschiedene Positionierungsmöglichkeiten der Kühl- und Heizelemente vor allem in der Anfangsphase der Experimente gewährleisten. Die Abdichtung der einzelnen Komponenten wird ausschließlich mit Viton O-Ringen in geeigneter Weise (siehe Abb. 2.3) vorgenommen. Als Heizung dient eine flexible quarz-fiberisolierte Heizschnur (Betriebstemperatur bis 800°C), die in der gebrauchten Länge eng um das Rohr gewickelt wird.

Bei der zweiten verwendeten Bauform (siehe Abb. 2.4 a und b) handelt es sich um eine Umkonstruktion des konzentrischen Heatpipeofens, wobei zwei Einzelheiten grundsätzlich verändert werden: Die innere Heatpipe ist als horizontales Kreuz ausgebildet /HJa 72/ und besitzt in Hinsicht auf die verwendeten Rohre und den Docht den gleichen Aufbau wie die zuvor beschriebene lineare Heatpipe. Lediglich die Flexibilität wird aufgegeben. Rohre und nötige Flansche sind verschweißt. Die Dochtstruktur läßt gerade die Flächen frei, wo sich die vier Rohrarme des Kreuzes treffen. Zweck der Kreuzform ist es, experimentell die Möglichkeit zu gewährleisten, senkrecht zur optischen- oder Laserachse Vorgänge, wie z.B. die Fluoreszenz, zu studieren. Der äußere Ofen wird hier - im Gegensatz zur konzentrisch angeordneten Heatpipe in Kap. 2.1 - von einer vertikal angeordneten, unten geschlossenen Heatpipe gebildet, die das Zentrum des Kreuzes umgibt. Das Heizrohr hat einen Außendurchmesser von 60 mm und eine Wandstärke von 2 mm. Damit läßt sich eine homogene Dampfzone

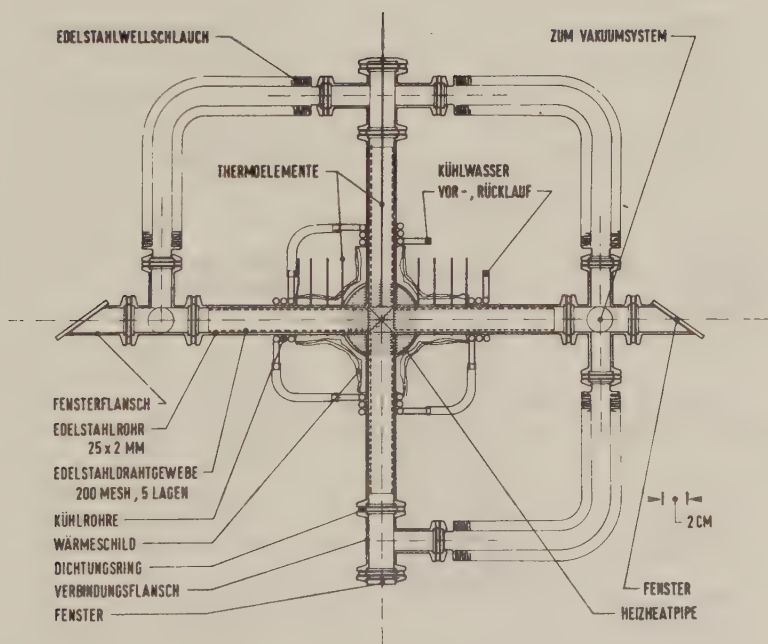


Abb. 2.4.a: Horizontaler Schnitt durch den gekreuzten Heat-pipeofen mit Brewsterfensterabschlüssen, innerem Kontrollthermoelement und Beobachtungsfenster.

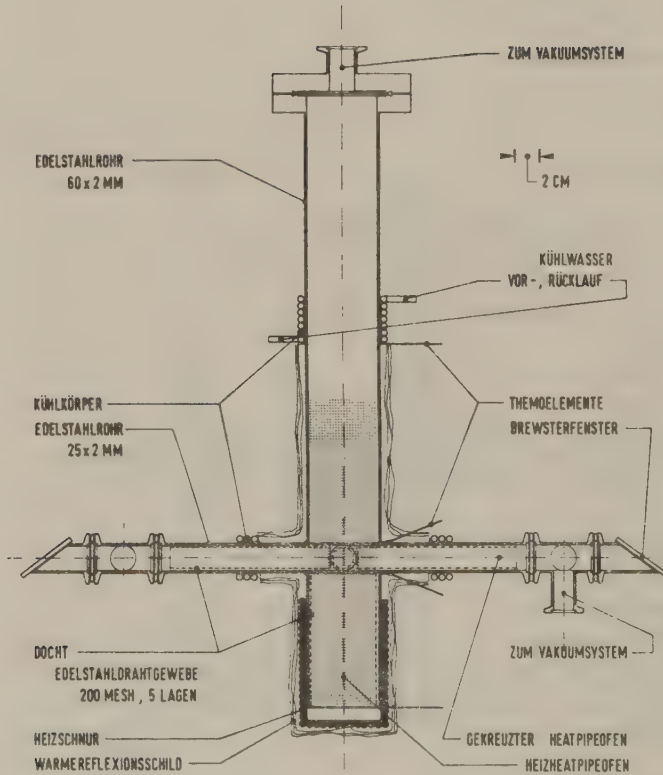


Abb. 2.4.b: Vertikaler Schnitt durch die Heizheatpipe für den gekreuzten Heatpipeofen.

von etwa 4 cm Länge erzeugen. Da der Rücktransport in der vertikal angeordneten Heatpipe durch die Gravitationskraft unterstützt wird, ist der Docht hier nur unterhalb des inneren Heatpipekreuzes auf der Innenseite zu finden. Die Heizung der gesamten Kombination wird ebenfalls mit einer flexiblen Heizschnur auf der Außenseite des unteren Teils der Heatpipe bewerkstelligt. Einfache, um das Rohr gewickelte Kupferrohre dienen hier als Kühlkörper.

Bei beiden Heatpipeöfen hat sich vor allem bei der Erzeugung von homogenen Dampfzonen die Benutzung von einfachen Wärmereflektionsschilden (z.B. einige Lagen Aluminiumfolie) um die Heizung und den freien Teil der Rohre zwischen Heizung und Kühlkörpern bewährt. Die Temperaturen werden an definierten Positionen durch auf die Außenwand angebrachte NiCrNi-Thermoelemente gemessen und kontrolliert. Für den Betrieb im Laserresonator (siehe Kap. 2.3.1) werden beide Heatpipeöfen an den Enden mit den, in den jeweiligen Abbildungen dargestellten, optischen Fenstern oder gar direkt mit Laserspiegeln versehen (siehe Abb. 2.3 und 2.4). Zu diesen Enden hin befinden sich auch jeweils die Verbindungsflansche zum Vakuum- und Gaseinlaßsystem. Bei dem kreuzförmigen Heatpipeofen ist sowohl dieser selbst als auch die Heizheatpipe getrennt mit dem System verbunden.

● 2.1.3 Vakuum- und Gaseinlaßsystem ●

Die Heatpipeöfen sind an ein Vakuum- und Gaskontrollsystem angeschlossen (Schema siehe Abb. 2.5). Das Pumpensystem besteht aus einer Quecksilberdiffusionspumpe mit Flüssigstickstoff-Kühlfalle zum generellen Auspumpen der Komponenten bis auf Drucke von etwa 10^{-6} mbar, sowie einer Feinvakuumdrehschieberpumpe mit vorgeschalteter Kühlfalle, die das Abpumpen von Gasen bei Betrieb der Öfen erlaubt (z. B. zum Regulieren des Puffergasdrucks). Daneben besteht das Vakuumsystem aus einigen Puffergefäßen (10 l Volumen), die es - verbunden mit den Öfen - gestatten, bei starken oder

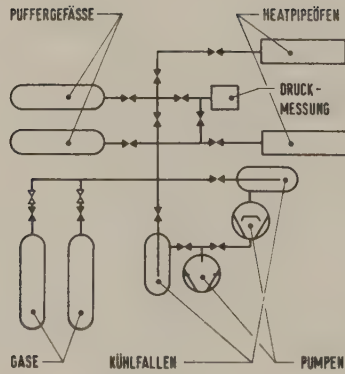


Abb. 2.5: Schematische Darstellung des zum Betrieb der Heatpipeöfen erforderlichen Vakuum- und Gaseinlaßsystems.

schwachen Heizleistungsänderungen den Puffergasdruck und damit Dampftemperatur und -druck konstant zu halten. Dies ist besonders wichtig beim Anfahren der Heatpipe oder beim Verändern von Dampfängen durch Heizleistungsänderung. Das zum Betrieb der Öfen notwendige Edelgas (meist Ar, Qualität 6.0, Fa. Messer Griesheim) wird über einen geeigneten Druckminderer und ein Dosierventil an das System angeschlossen. Die Druckmessung wird im Bereich bis 10^{-6} mbar mit einem Penningvakuummeter und im Bereich oberhalb 1 mbar mit einem Membranvakuummeter vorgenommen. Für den Bereich von 0.01 - 1000 mbar steht für Präzisionsmessungen ein Kapazitätsvakuummeter (Typ Barocel; Fa. Datametric) zur Verfügung, das über Ventile mit dem jeweiligen Heatpipeofen verbunden werden kann. An die Leckrate des gesamten Vakuumsystems werden hohe Anforderungen gestellt, da im Betrieb der Öfen die Pumpen abgeklemmt sind; sie beträgt etwa 10^{-6} mbar $\cdot$ l $\cdot$ sec $^{-1}$.

● 2.1.4 Betrieb, Eigenschaften der Öfen ●

Das Betreiben der in Kap. 2.1.2 vorgestellten Heatpipe-Öfen stellt sich, von einigen Ausnahmen abgesehen (siehe unten), als unkompliziert heraus.

● 2.1.4.1 Dampfdruckkurve von Natrium ●

Für den Betrieb der Öfen ist die Kenntnis der Natriumdampfdruckkurve unerlässlich. Sie bestimmt, wie in Kap. 2.1.1 beschrieben, zusammen mit dem äußeren Puffergasdruck die Temperatur des Dampfes und damit die Teilchenzahldichte im Dampf.

Diese Dampfdruckkurve ist für den Temperaturbereich von etwa 230 - 580°C in Abb. 2.6 dargestellt (nach /Nes 63/). Wie man in der Abbildung feststellt, handelt es sich bei den Dampfteilchen sowohl um Natriumatome (Na) als auch um Natriummoleküle (Na_2), wobei das Verhältnis von molekularer zu atomarer Konzentration im dargestellten Temperaturbereich von etwa 1% auf ungefähr 10% ansteigt.

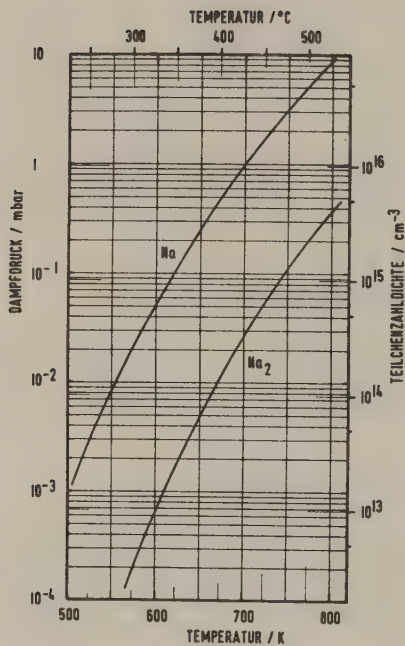


Abb. 2.6: Dampfdruckkurve von Natrium (nach /Nes 63/).

● 2.1.4.2 Druckbereich der Öfen ●

Die Produktion von homogenen Dampfzonen mit Dampfdrucken bis 30 mbar (größter in den Untersuchungen benutzter Na-Druck), ist problemlos. Schwierigkeiten in bezug auf Homogenität und Stabilität ergeben sich jedoch bei der Erzeugung von Dampfzonen unterhalb von 0.1 mbar (entsprechend 350°C). Eine kritische Betriebsweise (siehe Kap. 2.1) ist dann nicht mehr gewährleistet. Der Totaldruck in der Verdampfungszone kann den vorgegebenen Puffergasdruck erheblich übersteigen und hängt nur noch von der Heizleistung ab. Es kommt nicht mehr zu dem erwünschten flachen Temperaturprofil mit einem durch den Edelgasdruck vorgegebenen Dampfdruck. Dieses nicht kritische Verhalten des Ofens beruht darauf, daß die Dampfgeschwindigkeit zwischen Verdampfungs- und Kondensationszone wie an der engsten Stelle einer Düse nicht die Schallgeschwindigkeit überschreiten kann ('sonic limit', siehe z.B. /Vid 73, Chi 76/). Dadurch wird der Wärme- und der damit verbundene Materialtransport nach oben hin beschränkt und ist unabhängig vom Puffergasdruck. Es kommt zu einer Überhitzung der Heizzone. Bei den Untersuchungen wird deshalb ein Betrieb mit Drucken unterhalb von 0.1 mbar meist vermieden.

● 2.1.4.3 Besondere Funktionsweisen ●

Neben dieser Einschränkung bei der Wahl der Dampfdrucke muß grundsätzlich auf die besonderen Funktionsweisen der Öfen Rücksicht genommen werden.

So verlangt das Prinzip des konzentrischen Ofens (siehe Kap. 2.1.1) immer, daß der Puffergasdruck des inneren Ofens (bei Benutzung von gleichem Arbeitsmaterial in innerem und äußerem Ofen) größer sein muß als der des äußeren Heizofens. Ist das nicht der Fall (ist er z.B. kleiner oder gleich groß), so besteht die Gefahr des Austrocknens in der Region der Verdampfungszone des inneren Heatpipeofens (vor

allem im dochtfreien, gekreuzten Teil, der in unserem Fall abgewandelten Form des konzentrischen Ofens). Das liegt zum einen daran, daß sich kein Gleichgewicht zwischen äußerer Heizung und Kühlvermögen der inneren Heatpipe einstellen kann, zum anderen ist es dem Kondensat durch das Nichterreichen des Gleichgewichts unmöglich, in den dochtfreien Teil der Heizzone zurückzukehren. Der gekreuzte Ofen muß also immer unterkritisch gefahren werden. Nur in dieser Betriebsweise, in der das Kreuz nicht mehr als eigentliche Heatpipe arbeitet, ist der Materialtransport nach außen so gering, daß sich eine homogene Dampfzone ohne Austrocknen der freien Dochtpartie ausbilden kann.

Bei der Verwendung der linearen Heatpipe - zu Beginn der Experimente der einzige zur Verfügung stehende Natriumdampfofen - wird neben dem kritischen Betrieb zur Produktion von homogenen Natriumdampfzonen auch teilweise zur Bereitstellung von Natriumdampf-Gas-Gemischen auf die Form des unterkritischen Betriebs zurückgegriffen. Dann muß aber im Gegensatz zum konzentrischen Ofen eine nicht homogene Dampfzone in Kauf genommen werden. Das resultierende Temperaturprofil ist in diesem Fall mehr oder weniger durch das Profil der Heizung vorgegeben.

● 2.1.4.4 Beladen, Start, Lebensdauer ●

Zum Beladen der Heatpipeöfen wird, nach vorherigem Auspumpvorgang, die gesamte Rohreinheit und eine speziell für diese Zwecke an einem Fensterflansch angebrachte Plastikhaube ständig mit trockenem Stickstoff gespült. Unter dieser inerten Schutzatmosphäre wird das in Stangenformat vorliegende Natrium (Natrium zur Analyse; Fa. Merck) direkt vor dem Fensterstutzen in handliche Stücke geschnitten und anschließend sofort in den Bereich der Heizzone gebracht. Dadurch wird die Bildung von Oxid- und Hydroxidschichten vermieden. Die einzubringende Natriummenge hängt dabei vom freien Dochtvolumen ab, das im Betrieb für die Flüssigkeit

zur Verfügung steht. Zu große Natriummengen führen im Betrieb im äußersten Bereich der Kondensationszone zur optischen Blockade durch festes Natrium.

Nachdem der geschlossene Ofen abgepumpt ist, kann er in Betrieb genommen werden. Dazu wird er zunächst mit einem hohen Edelgasdruck gefüllt. Dieser soll nach dem Einschalten von Heizung und darauf folgendem Schmelzvorgang des Natriums einen zu schnellen unkontrollierten Benetzungsvorgang vermeiden. Durch zu hohe Strömungsgeschwindigkeit des Dampfes in diesem Moment besteht dann die Gefahr des Beschlagens der Fenster durch nach außen gelangenden Dampf. Nach vollendetem Schmelz- und Benetzungsvorgang werden nach dem Abschalten der Heizung die gerade beim Anfahren gebildeten gasförmigen Verunreinigungen abgepumpt. Nach aus diesem Grund mehrmals wiederholtem Aufheizen, Abkühlen und Abpumpen ist der Ofen betriebsbereit.

Bei den in den experimentellen Studien benutzten Öfen werden ohne Probleme bis zu 500 Betriebsstunden erreicht. Entscheidenden Einfluß auf eine hohe Lebensdauer haben dabei neben der chemischen Stabilität und Reinheit der Materialoberflächen (da geringste Fett- oder Oxidschichten die Benetzung der Oberflächen verhindern, ist eine Behandlung der Oberflächen durch übliche Hochvakuumreinigungstechniken /Rot 76/ vor dem Zusammenbau unerlässlich) vor allem auch die Qualität des verwendeten Natriums und Puffergases sowie eine gute Dichtheit des gesamten, die Heatpipe umfassenden Underdrucksystems. Daneben muß auf die richtige Handhabung der Öfen geachtet werden.

Insbesondere muß die Regulation von Heizleistung oder Puffergasdruck in langsamen Schritten erfolgen. So kann es im kritischen Betrieb bei zu starker Heizleistungserhöhung oder zu schneller Erniedrigung des Puffergasdrucks zu einem starken Materialtransport hin zu den Kühlzonen kommen. Da der Kondensatrücktransport durch Reibungskräfte im Docht nach oben begrenzt ist, kommt es dann zum Austrocknen im Ge-

biet der Heizzone. Wird nicht sofort die Heizung ausgeschaltet, so daß das Material die Möglichkeit besitzt, zurück in die Heizzone zu kehren und diese zu benetzen, besteht die Gefahr der Bildung einer Oxidschicht oder sogenannter 'Hot Spots'. Ein weiteres Betreiben des Heatpipeofens wird dadurch unmöglich.

Zu schnelles Erhöhen oder auch Erniedrigen des Puffergasdruckes im unterkritischen Betrieb, vor allem bei sehr hohen Puffergasdrücken, macht die Benutzung des Ofens besonders im Hinblick auf Laserbetrieb im Natriumdampf unmöglich: Durch kaltes, in die Verdampfungszone einströmendes Puffergas kommt es zur starken Nebelbildung. Diese Nebel kommen erst nach längerer Zeit (teilweise Stunden) zum Niederschlag ('Meteorologie' der Heatpipe). Auf die Lebensdauer des Ofens hat dieses unerwünschte Verhalten keinen Einfluß.

● 2.1.4.5 Temperaturmessung, Temperaturprofile, Dampfängen ●

Das einwandfreie Funktionieren der Öfen wird durch die Überwachung der Temperatur an wichtigen Punkten der Außenwand der Heatpiperohre kontrolliert. Testmessungen, wie die exakte Vermessung der Temperaturprofile in den Öfen (siehe unten), sind zur Erprobung des Verhaltens der Heatpipeöfen unerlässlich. Die Ermittlung der Temperaturprofile ermöglicht daneben auch die Bestimmung von experimentell wichtigen Parametern wie Teilchenzahldichte und Länge des Dampfes.

Zur Vermessung dient zum einen eine Reihe von außen auf dem Rohr angebrachten Thermoelementen sowie zum anderen ein Thermoelement, das vakuumdicht in axialer Richtung innerhalb der Dampfzone bei Heatpipebetrieb verschoben werden kann. Bei dem gekreuzten Heatpipeofen ist eine ständige Kontrolle der Dampftemperatur in der Zelle (falls es die Art des Experiments zuläßt) durch ein bis in die Dampfzone ragendes Thermoelement gewährleistet (siehe Abb. 2.4.a). Bei diesen Thermoelementen in der Heatpipe handelt es sich um

Mantelthermoelemente (NiCrNi mit einem Edelstahlmantel, Durchmesser 1 mm; Fa. Philips), die an der Meßstelle zur Vermeidung von Temperaturverfälschungen durch Wärmeableitung spiralenförmig ausgebildet sind. Die Messung der Temperatur erfolgt über ein mit einem Meßstellenumschalter verbundenen, geeichten, digitalen Temperaturmeßgerät mit einer Genauigkeit von $\pm 2^{\circ}\text{C}$ (Jumo digit; Fa. Jumo).

Die im Ofen gemessenen Temperaturverteilungen für typische Betriebswerte des gekreuzten Heatpipeofens sind in Abb. 2.7 dargestellt. Angegeben sind neben dem Puffergasdruck der kritisch betriebenen Heizheatpipe und dem des unterkritisch gefahrenen Kreuzes auch die Heizleistung für die senkrechte Heatpipe. Man erkennt deutlich, daß die Temperatur über eine Länge von etwa 3.5 cm konstant bleibt. Dagegen sinkt sie in den Übergangszonen sehr schnell ab. Da der Druck in angenähert exponentieller Weise von der Temperatur abhängt (siehe Abb. 2.6), fällt der Na-Dampfdruck noch steiler ab.

Probleme im Hinblick auf Homogenität der Dampftemperatur in radialer Richtung der inneren Heatpipe ergeben sich bei der Erzeugung von Dampfzonen mit Drucken von kleiner als 0.1 mbar. Dann nämlich arbeitet die senkrecht angeordnete Heizheatpipe nicht mehr im kritischen Betrieb (siehe Erläuterungen zu Beginn des Kapitels). Es kommt zu einem starken, vertikalen Temperaturgradienten über den zu heizenden gekreuzten Ofen. Bei dem abgebildeten Temperaturprofil mit einer maximalen Temperatur von etwa 325°C handelt es sich dabei also wegen der spiralenförmigen Ausbildung der Spitze des Thermoelementes (Durchmesser des Meßkopfes etwa 5 mm) um eine in vertikaler Richtung gemittelte Verteilung. Bei diesen Bedingungen liegen die typischen Temperaturunterschiede über dem Durchmesser des Ofens bei etwa 30 K.

Diese Temperaturgradienten verschwinden für Dampfzonen mit Temperaturen oberhalb von etwa 350°C . Die Temperatur kann dann auf $\pm 2^{\circ}\text{C}$ genau bestimmt werden. Das entspricht

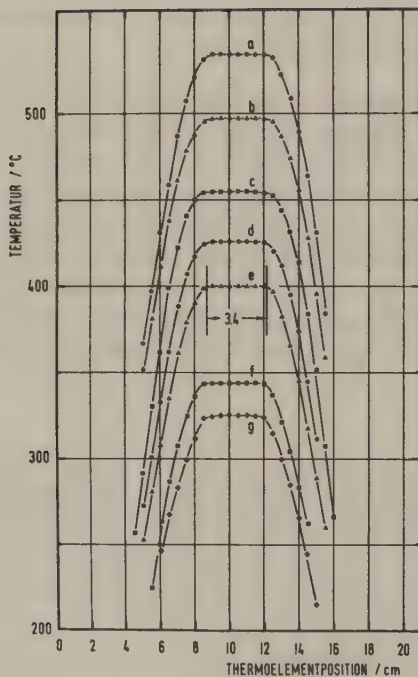


Abb. 2.7: Experimentell bestimmte Temperaturverteilungen des Natriumdampfes entlang des Laserresonatorachse im gekreuzten Heatpipeofen (a: $p_{\text{Ar}}^{\text{äußere}}$ Hp: 10 mbar, $p_{\text{Ar}}^{\text{innere}}$ Hp: 11 mbar, Heizleistung: 469 Watt; b: 5 mbar, 6 mbar, 445 Watt; c: 2 mbar, 3 mbar, 426 Watt; d: 1 mbar, 2 mbar, 348 Watt; e: 0.5 mbar, 1.5 mbar, 315 Watt; f: 0.1 mbar, 1.1 mbar, 255 Watt; g: 0.05 mbar, 1.05 mbar, 234 Watt).

Mantelthermoelemente (NiCrNi mit einem Edelstahlmantel, Durchmesser 1 mm; Fa. Philips), die an der Meßstelle zur Vermeidung von Temperaturverfälschungen durch Wärmeableitung spiralenförmig ausgebildet sind. Die Messung der Temperatur erfolgt über ein mit einem Meßstellenumschalter verbundenen, geeichten, digitalen Temperaturmeßgerät mit einer Genauigkeit von $\pm 2^{\circ}\text{C}$ (Jumo digit; Fa. Jumo).

Die im Ofen gemessenen Temperaturverteilungen für typische Betriebswerte des gekreuzten Heatpipeofens sind in Abb. 2.7 dargestellt. Angegeben sind neben dem Puffergasdruck der kritisch betriebenen Heizheatpipe und dem des unterkritisch gefahrenen Kreuzes auch die Heizleistung für die senkrechte Heatpipe. Man erkennt deutlich, daß die Temperatur über eine Länge von etwa 3.5 cm konstant bleibt. Dagegen sinkt sie in den Übergangszonen sehr schnell ab. Da der Druck in angenähert exponentieller Weise von der Temperatur abhängt (siehe Abb. 2.6), fällt der Na-Dampfdruck noch steiler ab.

Probleme im Hinblick auf Homogenität der Dampftemperatur in radialer Richtung der inneren Heatpipe ergeben sich bei der Erzeugung von Dampfzonen mit Drucken von kleiner als 0.1 mbar. Dann nämlich arbeitet die senkrecht angeordnete Heizheatpipe nicht mehr im kritischen Betrieb (siehe Erläuterungen zu Beginn des Kapitels). Es kommt zu einem starken, vertikalen Temperaturgradienten über den zu heizenden gekreuzten Ofen. Bei dem abgebildeten Temperaturprofil mit einer maximalen Temperatur von etwa 325°C handelt es sich dabei also wegen der spiralenförmigen Ausbildung der Spitze des Thermoelementes (Durchmesser des Meßkopfes etwa 5 mm) um eine in vertikaler Richtung gemittelte Verteilung. Bei diesen Bedingungen liegen die typischen Temperaturunterschiede über dem Durchmesser des Ofens bei etwa 30 K.

Diese Temperaturgradienten verschwinden für Dampfzonen mit Temperaturen oberhalb von etwa 350°C . Die Temperatur kann dann auf $\pm 2^{\circ}\text{C}$ genau bestimmt werden. Das entspricht

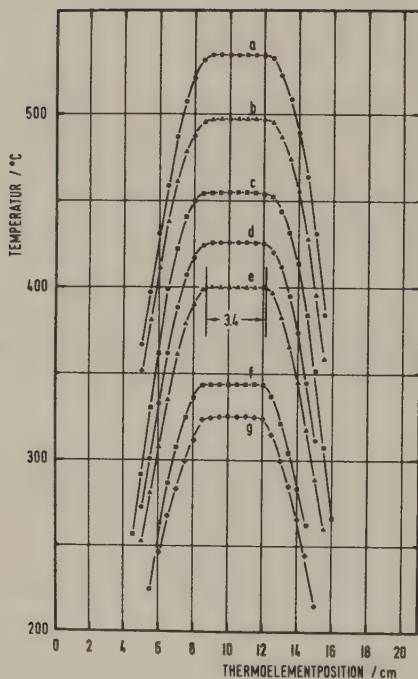


Abb. 2.7: Experimentell bestimmte Temperaturverteilungen des Natriumdampfes entlang des Laserresonatorachse im gekreuzten Heatpipeofen (a: p_{Ar} äußere Hp: 10 mbar, p_{Ar} innere Hp: 11 mbar, Heizleistung: 469 Watt; b: 5 mbar, 6 mbar, 445 Watt; c: 2 mbar, 3 mbar, 426 Watt; d: 1 mbar, 2 mbar, 348 Watt; e: 0.5 mbar, 1.5 mbar, 315 Watt; f: 0.1 mbar, 1.1 mbar, 255 Watt; g: 0.05 mbar, 1.05 mbar, 234 Watt).

einer Genauigkeit des Dampfdrucks (bestimmt über die Dampfdruckkurve) von etwa 3 - 6% (für größten und kleinsten Dampfdruck der in Abb. 2.7 gezeigten Dampfzonen). Die aus den Temperaturen im Maximum der Profile über die Dampfdruckkurve bestimmten Natriumdrucke stimmen im Rahmen der Meßgenauigkeit mit dem Puffergasdruck der äußeren kritisch betriebenen Heizheatpipe überein.

Die Temperaturprofile der linearen Heatpipe werden durch Messung der Temperatur der Ofenaußenwände bestimmt. Die Messung ist wegen Wärmeleitproblemen (Heizung, Rohrwand) hier ungenauer als bei der oben beschriebenen Methode (maximale Ungenauigkeit etwa 10 K). Deshalb wird die Messung des Temperaturprofils hier nur zur Kontrolle des Heatpipebetriebs und zur Vermessung der Dampfänge benutzt. Der Natriumdampfdruck wird im kritischen Betrieb über die Messung des Puffergasdrucks (Genauigkeit 1%) bestimmt. Größtenteils wird mit diesem Ofen eine Dampfänge von 30 ± 1 cm produziert. Die Länge kann aber auch variiert werden. Die Form der Übergangzone gleicht der des gezeigten gekreuzten Heatpipeofens.

Die Dampfzonenlänge kann neben der Vermessung der Temperaturprofile auch noch über die Messung des Wellenlängenprofils einer Absorptionslinie des Dampfes vorgenommen werden. Aus diesem Absorptionsprofil wird dann die Äquivalente Breite bestimmt (entspricht der Fläche unter dem Profil; näheres dazu siehe Kap. 3.1.3 Gl. (3.55)). Diese ist direkt mit der Dampfdichte, der spontanen Übergangswahrscheinlichkeit und der Dampfänge verknüpft. Bei Kenntnis der Dichte und der Übergangswahrscheinlichkeit kann dann einfach die Länge bestimmt werden. Zur Vermessung der Äquivalenten Breite wird dazu experimentell mit einem schmalbandigen (1 MHz) kontinuierlichen Dye-Laser (Mod. 380 D; Fa. Spectra Physics) das Transmissionsspektrum des Na-Dampfes um die Na D-Linien aufgenommen. Um Pumpeffekte zu vermeiden, muß die eingestrahlte Leistung im μ Watt-Bereich liegen. Der benutzte Laser wird deshalb stark abgeschwächt. Im Fall des gekreuzten Ofens, wo diese Methode hauptsächlich angewendet wird, ergibt sich so

z.B. für die Dampfzone mit einer Dampftemperatur von $400 \pm 2^{\circ}\text{C}$ (oder einem Dampfdruck von $0.5 \text{ mbar} \pm 5\%$) aus der Fläche des Absorptionsprofils eine Äquivalente Breite von $6.3 \text{ \AA} \pm 6\%$. Daraus folgt dann eine effektive Dampfänge von $3.4 \text{ cm} \pm 12\%$ (auch Übergangszonen tragen zur Absorption bei). Dieser Wert stimmt im Rahmen der Meßgenauigkeit gut mit der Breite im Maximum der Temperaturverteilung überein (siehe Abb. 2.7).

Die Eigenschaften verschiedener Betriebsarten und Haupteinsatzgebiete der beiden Natriumöfen sind in Tab. 2.1 zusammengefaßt dargestellt.

Tab. 2.1: Eigenschaften und Verwendung der benutzten Heatpipe-öfen

Heatpipetyp	Betriebsart	Dampfzone	Druckbereich	Einsatzgebiet
linearer Ofen	meist kritisch	Länge variabel: einige cm bis 30cm Durchmesser: 19 - 20mm	0.1 - mbar	Laserbetrieb in Na_2 , Na
gekreuzter Ofen	unterkritisch	Länge fest (3,4cm) Durchmesser: 19 - 20mm	0.1 - 10mbar	Laserbetrieb in Na, Fluoreszenzstudien, Ionisationsstudien

● 2.2 Blitzlampengepumpter Dylaser ●

Zur gepulsten Anregung des Natriumdampfes wird ein kommerzieller blitzlampengepumpter Farbstofflaser verwendet (Mod. FL 3000; Fa. Lambda Physik). Das Gerät besitzt 2 im Simmermode betriebene Blitzlampen, die über je ein Thyatron angesteuert werden. Die Abstimmung der Wellenlänge erfolgt zu Anfang der Experimente über ein Interferenzfilter. Später wird diese Art durch eine Verstimmung mit einem Gitter ersetzt. In beiden Fällen kann gegebenenfalls die Bandbreite durch Verwendung von Fabry-Pérot Etalons weiter reduziert werden. Die Wellenlängensteuerung und Synchronisation übernimmt im gitterbetriebenen Fall ein Mikroprozessor (TRS 80; Fa. Radio Shak, in Verbindung mit: FL 580; Fa. Lambda Physik). Im interferenzfilterbetriebenen Fall dagegen wird die Verstimmung über eine einfache, nicht synchronisierte Stepermotoransteuerung vorgenommen. Als Farbstofflösung wird 0.64 g Rhodamin 6G, gelöst in je 5 l Wasser und Methanol, benutzt. Die Eigenschaften des Dylasersystems sind in Tab. 2.2 aufgelistet.

Einige dieser Eigenschaften müssen kritisch betrachtet werden, da sie entscheidend Einfluß auf die Art der Durchführung der Experimente, die quantitativen Ergebnisse sowie deren Reproduzierbarkeit nehmen:

- (i) Schwankungen innerhalb des Dylaserpulsverlaufs:
Abb. 2.8 zeigt die mit einer schnellen Photodiode aufgenommenen Oszillographenspuren von etwa 100 Einzelschüssen des Dylasers. Die deutlich erkennbaren starken zeitlichen Instabilitäten in der Intensität des Pumplasers (10% Amplitudenschwankungen) schlagen sich, wie im gleichen Bild gezeigt, auch auf die Stabilität der erzeugten IR-Strahlung nieder.
- (ii) Einschränkungen in der Abstimmbarkeit des gitterbetriebenen Dylasers:
Da der Pumplaser, wie in Abb. 2.9 dargestellt, nur

Tab. 2.2: Typische Eigenschaften des benutzten DyeLasers
(bezogen auf 10 Hz Repetitionsfrequenz, 60 Joule
Entladungsenergie und Rhodamin 6G als Farbstoff)

Abstimmelement	Interferenzfilter (+Etalon)	Gitter (+Etalon)	
Ausgangsenergie	$\sim 40(30)$	$\sim 15(11)$	mJ
Amplitudenschwankung	± 10	± 10	%
Peak Ausgangsleistung	$\sim 4.8 \times 10^4$	$\sim 1.2 \times 10^4$	Watt
Pulslänge (FWHM)	~ 1.2	~ 0.8	μs
Pulslängenschwankung	~ 0.1	~ 0.1	μs
Strahldurchmesser	~ 4	~ 4	mm
Strahldivergenz	~ 1.5	~ 2	mrad
Blitzlampenlebensdauer	$\sim 2 \times 10^5 - 10^6$		Impulse
Dyelebensdauer			
(Abfall der Ausgangs- energie auf 20%)	$\sim 10^5$		Impulse
Bandbreite			
Anzahl der Moden	--	$\sim 2-3(1)$	
Modenabstand	--	35	GHz
Bandbreite eines Mode (FWHM)	--	17(17)	GHz
Total (FWHM)	$\sim 250(17)$	$\sim 50(17)$	GHz
Abstimmung	kontinuierlich	in Schritten von 35	GHz
Abstimmbereich (10, 100, 10%)	typ. 576, 596, 616		nm

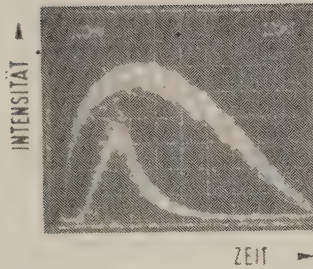


Abb. 2.8: Typische gemessene Signalschwankungen von Dyelaserpuls (oben) und erzeugtem IR Laserpuls (unten).

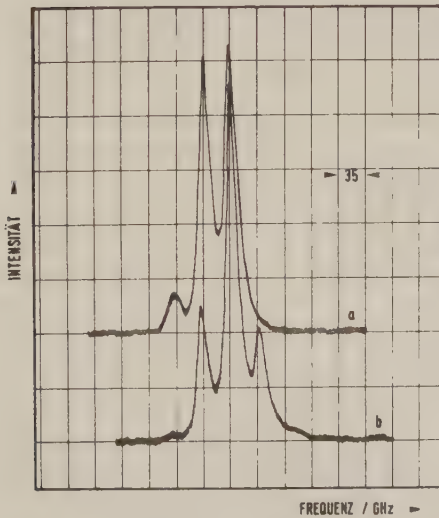


Abb. 2.9: Typische gemessene Modestruktur des gitterbetriebenen Dyelasers (a gegenüber b: leicht andere Gitterstellung des Dyelasers und damit Demonstration des nur schrittweisen Abstimmungsverhaltens)

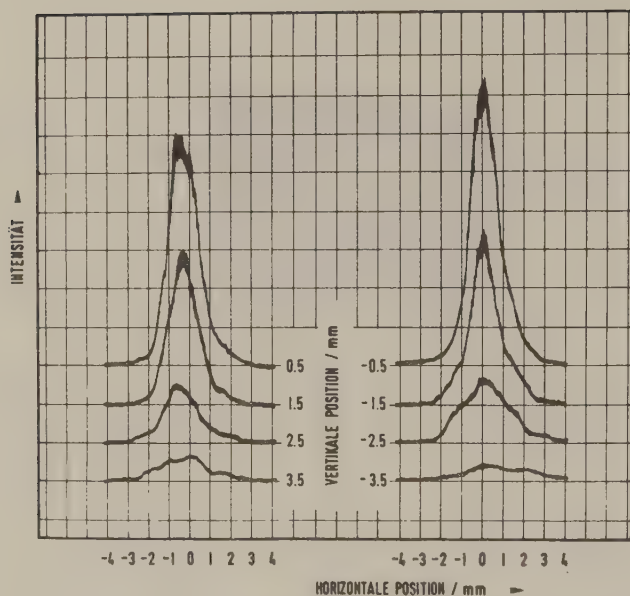


Abb. 2.10: Typische experimentell ermittelte horizontale Dye-laserstrahlprofile bei verschiedenen vertikalen Positionen.

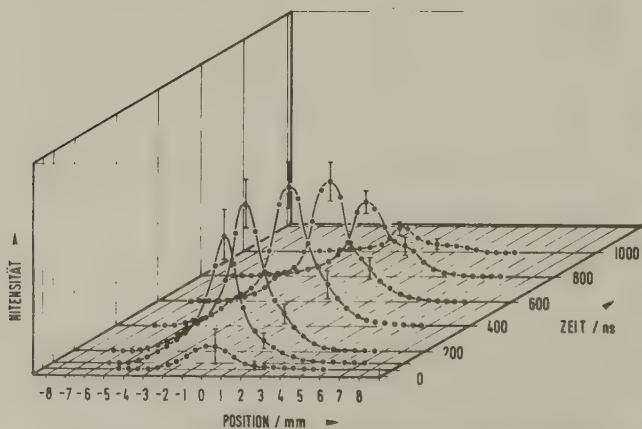


Abb. 2.11: Typische experimentell bestimmte horizontale Strahlprofile des Dye-lasers zu bestimmten Zeiten des Dye-laserpulsverlaufs.

in Schritten von 35 GHz abgestimmt werden kann und die Frequenzverteilung meist aus mehreren einzelnen Moden mit einer Halbwertsbreite von 17 GHz besteht, erlaubt es sich nur in den seltensten Fällen, den Dylaser exakt in Resonanz mit bestimmten optischen Übergängen im Natriumdampf zu bringen (Ausnahme: Anregung von stark verbreiterten Übergängen, wie z.B. in den Flügeln der stark selbstverbreiterten Na D-Absorptionslinie). Vor allem muß im Wellenlängenscanbetrieb (z.B. bei der Aufnahme von Anregungsspektren) auf dadurch zustandekommende Unterschiede in der Anregungswahrscheinlichkeit möglicher Übergänge geachtet werden. Daneben führen in der gleichen Weise zeitlich variierende Intensitätsverhältnisse dieser verschiedenen Dylasermode, die meist thermischer Natur sind, zu Instabilitäten bei fest vorgegebener Gitterstellung.

(iii) 'Weglaufen' der Dylasereigenschaften über längere Meßzeiten:

Hervorgerufen durch die hohe Pulsenergie der Xe-Blitzlampen kommt es zur Zerstörung der Farbstoffmoleküle. Dies führt nach typisch 10^5 Schuß bei maximaler Entladungsenergie von 60 Joule zu einem Abfall der Dylaserintensität auf etwa ein Zehntel des ursprünglichen Wertes bei frischer Farbstofflösung. Daneben wird der Puls auch zeitlich um etwa 20% kürzer. Ständige Kontrolle von Pulsform und Pulsintensität ist daher bei langen Meßreihen unerlässlich. Die auftretenden Änderungen sind beim Vergleich verschiedener Messungen vor allem in bezug auf die Pulsform zu berücksichtigen.

(iv) Räumliche Strahlverteilung:

Bei dem in der Tabelle aufgeführten Wert handelt es sich um einen auf einem unbelichteten Polaroidfilm eingebrannten Fleckdurchmesser. Abb. 2.10

zeigt dagegen die über den vertikalen Strahl hinweg vermessenen, zeitlich integrierten horizontalen Strahlprofile (gemessen mit einer $50\text{ }\mu\text{m}$ -Blende vor einer schnellen Photodiode auf der Höhe der Na-Dampfzone nach Abbildung durch ein Linsensystem; Integration der Pulse durch Boxcar Integrator mit $2.5\text{ }\mu\text{s}$ Gatebreite). In Abb. 2.11 sind typisch horizontale Dyelaser Strahlprofile zu verschiedenen Zeiten innerhalb des Laserpulses dargestellt (Meßbedingungen wie vorher; Veränderungen: 5 ns Gatebreite des Boxcars). Man erkennt deutlich, daß es sich bei den gemessenen Profilen nur annähernd um Gauß'sche Strahlverteilungen handelt. Es muß vermutet werden, daß bei den beobachteten starken Schwankungen im integrierten Signal die räumliche Veränderung im Profil von Schuß zu Schuß doch drastischer sind, als es diese über viele Schüsse gemittelten Kurven zeigen. Diese Annahme wird auch durch die zeitliche Beobachtung der stark fluktuierenden Pulsform bestätigt. Veränderungen der Strahlverteilung durch in (iii) aufgeführte Ursachen machen auch hier eine ständige Kontrolle erforderlich.

Soweit zu den doch teilweise erheblichen Instabilitäten im Betrieb des Dyelasers.

Die in den Experimenten notwendige Bestimmung der Pumpwellenlänge wird im Fall des interferenzfilterbetriebenen Dyelasers durch die Vermessung mit einem geeichten Monochromator mit einer Genauigkeit von 0.3 nm vorgenommen. Diesbezüglich besitzt der eichbare Gitterantrieb (Genauigkeit: 0.03 nm) wegen seiner Linearität sowie der Möglichkeit eines synchronisierten Gitter-Etalonscanbetriebs Vorteile (Scanbereich $\sim 0.4\text{ nm}$). Diese kommen jedoch durch die obengenannten schrittweise Abstimmbarkeit nur bedingt zum Tragen. Die exakte Vermessung der Wellenlänge vor allem in der Umgebung der Na D-Linien wird durch paralleles Vermessen des Absorptionsprofils der Na D-Linien durch eine Natriumdampfzelle

mit geringem Dampfdruck gewährleistet (siehe Abb. 2.1: HP). Die grobe Kontrolle der Modestruktur des Dyelasers kann jederzeit durch ein Monitoretalon (Freie Spektralbreite: 173 GHz; FWHM Bandbreite: 16.4 GHz) vorgenommen werden. Zur exakten Vermessung steht ein scanbares Etalon zur Verfügung (Mod. 410; Fa. Spectra Physics: 300 GHz Freie Spektralbreite; 10% Bandbreite: 6 GHz).

● 2.3 Optikaufbau ●

● 2.3.1 Infrarot Laserresonatoren ●

Das Kernstück der Laserexperimente bildet der um den Na-Heatpipeofen angeordnete IR Laserresonator (siehe Abb. 2.1). Im Laufe der Untersuchungen werden dabei verschiedene Resonatoraufbauten benutzt. Grundsätzliche Unterschiede bestehen dabei durch die beiden verschiedenen Einkoppelarten des sichtbaren Dyelaserstrahls in den IR Resonator:

- (i) Direkte Einkopplung durch einen der beiden Resonatorendspiegel:

Die Transmission des sichtbaren Dyelaserlichts (etwa 40 - 80% zwischen 590 und 610 nm) sowie die Reflexion (99% zwischen 4.2 und 5 μm und 58% bei 3.4 μm) wird dabei durch eine spezielle, dielektrische Bedampfung eines flachen CaF_2 Spiegelsubstrats erreicht (Fa. Oriel). Der Resonator wird von einem Auskoppelspiegel (CdTe , 5 m Krümmungsradius, Reflexion: etwa 95% zwischen 4.5 und 5.5 μm , 55% bei 3.4 μm) vervollständigt. Durch die besondere Bedampfung der beiden Laserendspiegel ist sowohl die Einkopplung im Sichtbaren als auch die Reflexion im Infraroten stark wellenlängenabhängig. Es besteht hier jedoch die einfache - gerade zu Anfang der Experimente benutzte - Möglichkeit, die Spiegel direkt als Abschluß des Heatpipeofens zu benutzen (Abb. 2.3). Der Spiegelabstand beträgt dann etwa 78 cm.

Tab. 2.3: Benutzte Laserresonatoren -
Aufbau, Daten, Eigenschaften

Bezeichnung	Spiegel 1	Spiegel 2	Dyelaser- Einkopplung	Spiegel- abstand
Resonator 1	diel. bed. CaF ₂ Spiegel R = 99% (4.2 - 5µm) 58% (3.4µm) T = 43% (590µm) 75% (610nm) r = ∞	diel. bed. CdTe Spiegel R = 95% (4.5 - 5.5µm) 55% (3.4µm) r = 5m	direkt durch Spiegel 1	78cm
Resonator 2	Goldspiegel R = 98% r = 3m	diel. bed. CdTe Spiegel R = 30% (3.4µm) r = 10m	Reflexion über Ge Brewsterplatte	135cm
Resonator 3	Goldspiegel R = 98% r = 3m	Goldspiegel R = 98% r = ∞	--H--	--H--
Resonator 4	Goldspiegel R = 98% r = 3m	Goldspiegel R = 98% r = 10m 2mm Loch	--H--	--H--

* Fleckdurchmesser d_1 an Spiegel 1
Fleckdurchmesser d_2 an Spiegel 2
Strahltaile d_0 mit Entfernung E_1 von Spiegel 1
Divergenzwinkel α
Formeln dazu siehe /Kli 66/

Elemente im Resonator	Besonderheiten	TEM ₀₀ - Strahleigenschaften ⁺	Einsatzgebiete
Keine; teilweise Abschluß des Heatpipeofens mit CaF ₂ Brewsterf.	Spiegel direkt an Heatpipeofen; starke Wellenlängen- abhängigkeit	$d_1 = d_0 = 2.8\text{mm}$ $d_2 = 3.1\text{mm}$ $\alpha = 8\text{mrad}$	Anfangsexperiment Lasertätigkeit im Na ₂ und Na
2 CaF ₂ Brewster- zellenfenster; 2 Ge Brewsterplatten	Cut-on: 2 μm (Ge); Cut-off: 8 μm (CaF ₂); weniger starke Wellenlängenabhängigkeit	$d_1 = 3.2\text{mm}$ $d_2 = 2.52\text{mm}$ $d_0 = 2.5\text{mm}$ $t_1 = 113.4\text{cm}$ $\alpha = 9\text{mrad}$	Lasertätigkeit im Na
--"	Cut-on, Cut-off wie Resonator 2; keine Wellenl.-abhängigkeit; Auskopplung über Reflexion an CaF ₂ Brewsterfenster	$d_1 = 3.42\text{mm}$ $d_2 = d_0 = 2.54\text{mm}$ $\alpha = 9\text{mrad}$	--"
--"	Cut-on, Cut-off wie Resonator 2; keine Wellenl.-abhängigkeit; Auskopplung über Loch	wie Resonator 2	--"

- (ii) Einkopplung über eine sich im Resonator befindende Germanium Brewsterplatte (siehe Abb. 2.1):

Hier wird bei Polarisation des Dylaserstrahls senkrecht zur Einfallsebene (s-Polarisation) etwa 83% in den Resonator reflektiert (bei p-Polarisation nur 10%). Der Vorteil dieser Einkopplung besteht in der Möglichkeit, weniger wellenlängenabhängige Resonatorkomponenten zu verwenden: Als Endspiegel können z.B. einfache goldbedampfte Spiegel eingesetzt werden. Die Auskopplung kann über einen dielektrisch bedampften Halbleiterspiegel, einen Goldspiegel mit Loch, oder über den Reflex einer sich im Laserresonator befindenden Brewsterplatte erfolgen. CaF_2 Brewsterfenster dienen als Abschlüsse des Heatpipeofens. Zu Diagnosezwecken kann der Dylaserstrahl hinter dem Heatpipeofen (Bestimmung der Pumplichtabsorption, Untersuchung des transmittierten Pulsverlaufs) durch eine zweite Ge Brewsterplatte wieder aus dem Laserresonator ausgekoppelt werden. Auch dieses Ein- und Auskoppeln des Dylasers ist in dessen Abstimmbereich unabhängig von der Wellenlänge. Durch die vielen, sich im Strahlengang befindenden, optischen Elemente wird hier ein Abstand von 135 cm zwischen den Laserendspiegeln gewählt.

Als adäquate Spiegelkonfiguration im Hinblick auf Strahldurchmesser, Winkeldivergenz und Stabilität wird bei den Resonatoren auf die Kombination von Planspiegel und Spiegel mit großem Krümmungsradius (typ. 3 - 10 m) oder nur auf Spiegel mit großem Radius zurückgegriffen. Grundsätzlich muß bei der Wahl der Länge darauf geachtet werden, daß mindestens einige longitudinale Resonatormoden innerhalb des Verstärkungsprofils des Lasermediums (angenähert also innerhalb der Linienbreite des Laserübergangs) liegen.

Die entsprechend diesen Vorbedingungen realisierten und in den Experimenten benutzten Resonatoraufbauten sind in Tab.

2.3 zusammengefaßt. Die darin aufgeführten Werte der Strahldurchmesser und -taillen (e-tel Breite) für die verschiedenen Resonatoren sind dabei nur als Richtgröße zu verstehen, da sie für den niedrigsten transversalen Mode (TEM_{00}) bestimmt sind /KLi 66/.

Die eigentliche transversale Strahlverteilung im Experiment kann davon erheblich abweichen. Sie hängt wesentlich von der lateralen Strahlform und -qualität des Pumplasers ab. Auf ein exaktes 'Modematching' wird verzichtet. Um den berechneten Werten doch möglichst nahe zu kommen, wurde der Dyelaserstrahldurchmesser im Natriumdampf so gewählt, daß er immer etwas größer als die Strahltaillen der IR Resonatoren ist. Damit wird für eine, im Rahmen der in Kap. 2.3 (siehe dort unter (iii) und (iv)) diskutierten Dyelaserseigenschaften, vernünftige Überlappung der beiden Strahlen gesorgt. Bei dem anfänglich verwendeten Aufbau (Resonator 1, siehe Tab. 2.3) wird der Dyelaserstrahl direkt ohne Manipulation mit einem Strahldurchmesser von 5 ± 0.2 mm über die etwa 30 cm lange Dampfzone in den Resonator eingeschossen. In später durchgeführten Experimenten mit kurzer Dampfzone (z.B. 3.5 cm) und den benutzten Resonatoren 2 - 4 (siehe Tab. 2.3), wird eine leichte Fokussierung des Strahls mit einem etwa 1:1 abbildenden Teleskopsystem vorgenommen (siehe Abb. 2.1). Der dann gemessene Strahldurchmesser, der über die kurze Dampfzone im Rahmen der Meßgenauigkeit konstant ist, beträgt meist 3 ± 0.2 mm. Notwendige Korrekturen durch Veränderungen der Dyelaserstrahleigenschaften können durch dieses Linsensystem vorgenommen werden.

2.3.2 Optischer Nachweis

Der Nachweis von Pumplaserstrahlung sowie erzeugter IR Laserstrahlung oder Fluoreszenz im sichtbaren und infraroten Spektralbereich erfolgt über, im jeweiligen spektralen Gebiet geeignete, schnelle Photonendetektoren. Zur spektralen Festlegung des beobachteten Lichtes dienen entweder ent-

Tab. 2.4: Eigenschaften der benutzten Detektoren

Detektor	Typ/Hersteller	Fläche (mm ²)	Anstiegszeit (ns)	Empfindlichkeit (A/W)	Betriebsart	Spannung (V)	Spektralbereich
IR Detektor	InSb/SBRC	0.79	60	2.47 (4.6µm)	photovoltaisch	--	- 5.5µm
Si Photodiode	SGD444/EG-G	100	10	0.3 (0.6µm)	photoleitend	90	0.4 - 1.1µm
Si Photodiode	SD444/SDC	100	250	0.35 (0.6µm)	photoleitend	9	0.4 - 1.1µm
Photomultiplier	9797B - S20E/EMI	415	15 (Delay: 80ns)	2.5×10^5 (0.7µm)	--	950	0.36 - 0.9µm

sprechende Interferenzfilter oder Monochromatoren. Die Abbildung des Lichts wird mit geeigneten Linsen und Linsensystemen vorgenommen (siehe auch Abb. 2.1).

2.3.2.1 IR Detektor

Zum Nachweis der Infrarotstrahlung wird ein empfindlicher photovoltaischer IR Detektor benutzt (Fa. SBRC; siehe Tab. 2.4). Dabei handelt es sich um ein InSb Detektorelement mit einem Durchmesser von 1 mm, das mit einem Dewargefäß auf der Temperatur von flüssigem Stickstoff (77 K) gehalten wird (6 Stdn. Betriebszeit). Das Element samt Dewargefäß befindet sich in einem evakuierbaren Behälter. Das Eintrittsfenster besteht aus Saphir (freier Durchmesser 19.3 mm, Dicke 2 mm).

Die entscheidende Größe für den Einsatz eines IR Detektors ist seine Detektivität D^* (zu Theorie und Betrieb von IR Detektoren siehe /HHu 75/). Normalerweise ist für einen Detektor mit einer Ausgangsspannung U_s , die proportional zur einfallenden Strahlungsleistung P ist, die Empfindlichkeit U_s/P die wichtigste Größe. Das kleinste detektierbare Signal jedoch hängt vom Rauschen des Detektors ab. Da der Rauschpegel U_n proportional zu $(A\Delta\nu)^{1/2}$ ist (A ist die empfindliche Fläche und $\Delta\nu$ die Bandbreite des Detektors), ist es sinnvoll, die Empfindlichkeit U_s/P des Detektors mit seinem normierten Rauschen $U_n/(A\Delta\nu)^{1/2}$ zu vergleichen. Das Verhältnis von beiden ist definitionsgemäß die Detektivität $D^* = U_s(A\Delta\nu)^{1/2}/U_n P$ in $\text{cm Hz}^{1/2}/\text{W}$. $1/D^*$ ist also gerade die normierte Strahlungsleistung, die ein Signal-Rauschverhältnis von $U_s/U_n = 1$ erzeugt. Begrenzt wird dabei die Detektivität eines im IR Gebiet arbeitenden Detektors nicht durch sein Eigenrauschen (vor allem: thermisches Rauschen), sondern hauptsächlich durch die thermische Hintergrundstrahlung. Sollen also schwache Signale nachgewiesen werden, wie sie bei IR Fluoreszenzstudien meist auftreten, muß das Detektorelement auf tiefe Temperaturen abgekühlt werden und die

Hintergrundstrahlung dadurch reduziert werden, daß durch Gebrauch von Filtern vor dem Detektor der eingesehene Spektralbereich eingeengt wird. Abb. 2.12 zeigt die spektrale Detektivitätskurve des verwendeten InSb-Detektors bei Flüssigstickstofftemperatur im Wellenlängenbereich zwischen 1 und 6 μm . Seine maximale Detektivität beträgt bei 5 μm $1.77 \times 10^{11} \text{ cm Hz}^{1/2}/\text{W}$.

Ein speziell angepaßter Vorverstärker (Mod. 230; Fa. SBRC), dessen Spannungsversorgung über eine wiederaufladbare Batterie erfolgt, dient zur Verstärkung des vom Detektor erzeugten Signals. Das typische Rauschen hat nach dem Vorverstärker in 50 Ω gemessen einen Wert von 10 mV (Spitze zu Spitze). Bei Aufnahme der zeitlichen Abhängigkeit von IR Signalen ist die Kenntnis der Ansprechzeit des gesamten Detektorsystems (Detektor und Vorverstärker) erforderlich. Zur Bestimmung der (10 - 90%) Anstiegszeit wird dazu mit einem Oszillographen die Antwort des Systems auf eine mit einem Pulsgenerator betriebene, schnelle IR LED (Typ: ME60; Fa. Monsato: 1 ns Anstiegszeit) gemessen. Sie beträgt $60 \pm 5 \text{ ns}$. Daneben ist für die Untersuchungen die Linearität des Nachweises wichtig. Das System ist, wie ebenfalls experimentell bestimmt, im Bereich der Ausgangsspannung von 5 mV bis 1 V (gemessen in 50 Ω) auf 10% linear.

Die Bestimmung der IR Signalstärke wird über die vom Hersteller speziell für diesen Detektor spezifizierten Daten vorgenommen. Die Ausgangsspannung U_o (in 50 Ω) nach dem aus Stromverstärker (mit einem Rückkopplungswiderstand $R_f = 10^3 \Omega$) und Spannungsnachverstärker (mit einem Verstärkungsfaktor $A_v = 20$) bestehenden Vorverstärker berechnet sich aus der auf den Detektor fallenden Strahlungsleistung $P(\lambda)$ nach: $U_o = P(\lambda)R(\lambda)R_fA_v$. Dabei ist $R(\lambda)$ die Kurzschlußstromempfindlichkeit des Detektors bei der Wellenlänge λ . Die maximale Empfindlichkeit $R(\lambda_{\text{max}} = 4.6 \mu\text{m})$ beträgt 2.47 A/W. Bei anderen Wellenlängen kann die Empfindlichkeit daraus entsprechend der spektralen Detektivitätskurve bestimmt werden. Die de-

tektierte Leistung $P(\lambda)$ ist also:

$$P(\lambda) = 2.02 \times 10^{-5} (U_0/V) / r(\lambda) \text{ W} \quad (\text{wobei } r(\lambda) = R(\lambda) / R(\lambda_{\max})).$$

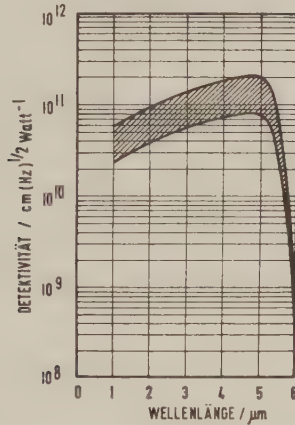


Abb. 2.12: Spektrale Detektivitätskurve $D^*(\lambda)$ für den benutzten InSb IR Detektor (nach /SBR 75/).

● 2.3.2.2 Detektoren im sichtbaren Spektralbereich ●

Im Sichtbaren stehen einmal zur Detektion des Dylaserstrahls schnelle, großflächige, batteriebetriebene Silizium Photodioden (Typ SGD444, Fa. EG+G; Typ SD444, Fa. SCD) bereit. Sie werden hauptsächlich zur Messung der Pulsform des einfallenden und transmittierten Dylasers und in Kombination mit Blenden zur Messung von Strahlprofilen eingesetzt. Zum anderen wird für Fluoreszenzstudien auf einen Photomultiplier zurückgegriffen (Typ 9797B-S20E Kathode; Fa. Emi). Neben diesen, für eine gute Zeitauflösung notwendigen Detektoren, deren genaue Spezifikationen Tab. 2.4 zu entnehmen sind, steht zur Kontrolle der Leistung des gepulsten Dylasers ein

Tab. 2.5: Eigenschaften der benutzten Monochromatoren

Bezeichnung/ Typ/Hersteller	Konfiguration	Brenn- weite f (m)	Öffnungs- verhältn. (L/mm)	Gitter	Ord- nung	Dis- persion ($\frac{\text{\AA}}{\text{mm}}$)	Blaze- Wellenl. (μm)	70 % Effizienz- bereich (μm)	Auflösung (bei Spaltbreite) ($\frac{\text{\AA}}{\text{\AA}}$)
Monochromator 1/ 30SMV/Minuteman	Czerny-Turner (asymmetrisch)	0.5	f/6.9	1200	1.	16.7	0.5	0.33 - 0.75	0.3 (0.01 nm)
					1. 2.	135 67.5	5 2.5	3.33 - 7.5 1.66 - 3.75	67.5 (0.5 nm) 35.8 (0.5 nm)
Monochromator 2/ Minimate 1670/ Spex	Czerny-Turner	0.22	f/4	1200	1.	40	0.5	0.33 - 0.75	100 (2.5 nm) 10 (0.25 nm)
					150	300	2.5	1.66 - 3.75	750 (2.5 nm)

absolutes, kalibriertes Leistungsmeßgerät zur Verfügung (Mod. 36-2001; Fa. Scientech, Inc.).

● 2.3.2.3 Monochromatoren, Interferenzfilter, Strahlabschwächer ●

Die Wellenlängenanalyse der IR Laserstrahlung wird mit einem 0,5 m Monochromator vorgenommen (siehe Abb. 2.1). Mit dem in ihm benutzten Gitter (150 Striche/mm, Blazewellenlänge: $5\text{ }\mu\text{m}$ in 1. Ordnung oder $2.5\text{ }\mu\text{m}$ in 2. Ordnung), kann der IR Bereich von $1 - 7.5\text{ }\mu\text{m}$ untersucht werden. Die damit bereitgestellte Dispersion reicht aus, um wichtige, nahe beieinanderliegende Übergänge zu trennen (z.B. Dublettübergänge im Natrium).

Für Fluoreszenzstudien im sichtbaren und infraroten Spektralbereich steht ein weiterer Monochromator mit einer Brennweite von 0.22 m und entsprechenden Gittern zur Verfügung (siehe Abb. 2.1). Er wird auch teilweise zur Bestimmung der Dylaserwellenlänge benutzt.

In Tab. 2.5 sind die Eigenschaften der beiden Monochromatoren zusammengefaßt. Beide Geräte verfügen für die Aufnahme von Spektren über entsprechend variable, elektrische Antriebe, die sich mit dem Signalerfassungssystem synchronisieren lassen. Zur genauen Festlegung von Wellenlängen werden die Geräte mit standardgemäßen Eichlampen (z.B. Hg-Niederdruckentladungslampen, oder auch He-Ne Laser) kalibriert.

Zur groben Wellenlängenbestimmung, sowie zur eindeutigen Festlegung der Wellenlänge in Verbindung mit den Monochromatoren, werden verschiedene, in Tab. 2.6 aufgeführte Langpass-, Kurzpass-, Schmalband- und Halbleiterfilter verwendet.

Um die Übersteuerung der verschiedenen Detektoren durch zu hohe Intensität der Strahlung (z.B. durch Dylaser oder

Tab. 2.6: Eigenschaften der benutzten IR Filter

Bezeichnung	Substrat	GröÙe Durchm. x Dicke (mm)	Cut-on Wellenlänge* (μm)	Cut-off Wellenlänge* (μm)	Minimale Transmission	Bezugs- quelle
Langpassfilter	Ge	12.1 x 1	4.41	--	85% (4.5 - 8 μm)	Oriel
Langpassfilter	--	25 x 1	3.74	--	70% (3.86 - 6.65 μm)	Laser- optronic
Kurzpassfilter	--	25 x 1	--	3.08	80% (- 2.95 μm)	Laser- optronic
Schmalbandfilter	--	25 x 1	3.33	3.44	61% (3.35 - 3.41 μm)	Laser- optronic
Halbleiterfilter	Ge	25 x 3	1.9	--	45% (2.1 - 15 μm)	Oriel
Halbleiterfilter	CdTe	25 x 3	0.85	--	63% (2.5 - 20 μm)	Oriel
Abschwächer	Glas	25 x 3	--	--	6.5% (3.4 μm)	--

* bei 10% Transmission

IR Lasertätigkeit) zu vermeiden, werden in den jeweiligen Spektralbereichen Abschwächer benötigt. Im Infraroten handelt es sich dabei um unter festem Winkel in den Strahlengang gebrachte Halbleitersubstrate oder einfache Glasplatten (Transmissionsdaten siehe Tab. 2.6). Im sichtbaren Bereich werden einfache Graufilter vor den Detektoren benutzt.

Zur definierten Abschwächung des in den IR Laserresonator einzukoppelnden Dyelasers dient ein Satz ausgesuchter, kalibrierter Neutraldichtefilter (ausgesucht im Hinblick auf die Strahlablenkung oder -versetzung in bezug auf die Strahlrichtung des Dyelasers).

● 2.4 Signalaufnahme, Meßtechniken ●

Die zur Untersuchung der optisch gepumpten IR Lasertätigkeit notwendigen elektronischen Meßtechniken und Signalaufnahmeverfahren sollen im Folgenden vorgestellt werden (Schematische Darstellung der Meßaufbauten siehe Abb. 2.1 oder detaillierter Abb. 2.12,13,14).

● 2.4.1 Zeitstudien ●

Zur Aufnahme der zeitlichen Abhängigkeit der verschiedenen Signale stehen zwei schnelle Meßsysteme zur Verfügung: ein Oszillograph (Mod. 7704; Fa. Tektronix, 250 MHz Bandbreite) und ein Transienten Recorder (TR; Mod. 8100; Fa. Biomation, 25 MHz Bandbreite) in Verbindung mit einem Signal Averager (SA; Mod. N1174; Fa. Nicolet) (siehe Abb. 2.12). Der Einsatz des jeweiligen Gerätes hängt grundsätzlich von der Art des zu messenden Signals ab: Starke Lasersignale (sowohl vom Dyelaser als auch vom IR Laser) werden ohne Probleme mit dem Oszillographen gemessen. Schwache Signale mit schlechtem Signal-Rausch-Verhältnis (teilweise < 1) werden mit der TR-SA Kombination durch ein rauschunterdrückendes Signal-Averaging Verfahren registriert und gespeichert.

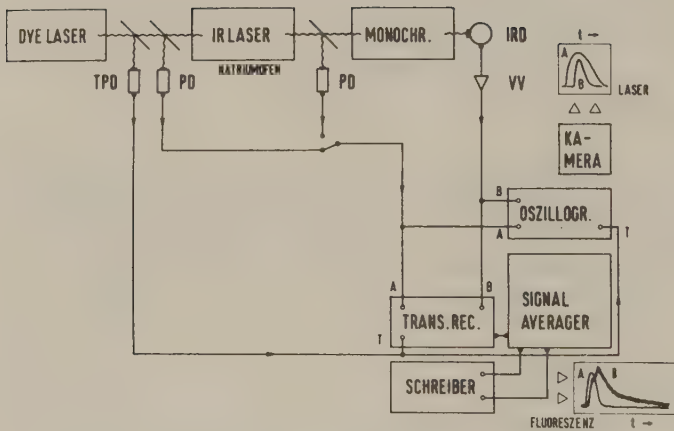


Abb. 2.13: Meßaufbau zur Beobachtung von zeitlich aufgelöster IR Laserstrahlung und IR Fluoreszenz (IRD: IR Detektor; VV: Vorverstärker; PD: Photodiode; TPD: Triggerphotodiode).

Bei der Aufnahme mit der TR-SA Kombination unterteilt der TR das Eingangssignal zunächst in 2048 gleiche Zeitintervalle mit einer minimalen Breite von 10 ns. Der Signalstärke in jedem Intervall wird ein digitaler Wert zwischen 0 und 255 zugewiesen (0 und 255 entsprechen dabei der vorgewählten maximal negativen und positiven Eingangsempfindlichkeit). Dieser Wert wird in Form eines binären 8-Bit Wortes gespeichert und nach der Erfassung eines ganzen, 2048 Kanäle umfassenden Signals in serieller Form über ein spezielles Interface (Mod. 178; Fa. Nicolet) auf den SA übertragen und dort zu dem schon vorhandenen Wert des entsprechenden Kanals addiert. Nach dem Transfer aller 2048 Kanalinhalte in den gleichlangen Speicher des SA wird das Signal zur Darstellung auf dem averagereigenen Oszillosraphenschirm wieder in ein analoges umgewandelt.

Durch Aufnahme von N identischen Signalen und ihrer Mittelung (in diesem Fall: einfaches Addieren) erhält man so eine Signal-Rausch-Verhältnisverbesserung um eine Faktor $N^{1/2}$. Neben dem das Signal überlagernden und überdeckenden Rauschen begrenzt auch die Meßzeit die Möglichkeiten eines solchen Signal-Averaging Systems. Bei einer üblichen Meßdauer von 2 Minuten (begrenzt durch in Kap. 2.2 beschriebene Instabilitäten des Dyelasers) und einer Wiederholfrequenz von 10 Hz kann das Signal-Rausch-Verhältnis etwa um einen Faktor 35 erhöht werden. Bei minimal vernünftigem Signal-Rausch-Verhältnis von 10 nach dem Mitteln kann ein anfängliches Signal-Rausch-Verhältnis von etwa 0.3 in Kauf genommen werden. Je nach Größe dieses Verhältnisses werden in den Fluoreszenzexperimenten typisch 512, 1024 oder 2048 (in seltenen Fällen auch 4096 oder mehr) einzelne Pulse aufaddiert und gespeichert.

Systematisches Rauschen durch verschiedene Störquellen kann jedoch die Möglichkeiten des Signalmittelns stark herabsetzen. Vor allem der Dyelaser erzeugt durch Thyatron und Blitzlampen RF Störpulse, die nur durch adäquates Abschirmen der Detektoren und Benutzung von doppelt abge-

schirmten Signalübertragungsleitungen eliminiert werden können (da die normalen Meßleitungen mit einfachem Geflechtsschirm eine nicht ausreichende Abschirmung besitzen, werden sie zusätzlich mit einem elektrisch vollkommen dichten Folienschirm umgeben). Zur Vermeidung von Einkopplung eines ebenfalls von den Blitzlampen erzeugten starken niederfrequenten Rauschens ('Ringing') sowie zur Vermeidung von Erdschleifen ist es wichtig, alle Meßkomponenten - also Detektor, Vorverstärker, Spannungsversorgung (nur Batterien), Transienten Recorder und Signal Averager (oder Oszillograph; für andere Studien auch Boxcar) - elektrisch isoliert aufzubauen. Die Erdverbindungen werden über die abgeschirmten Signalübertragungskabel zwischen den einzelnen Instrumenten hergestellt. Die Erdung von nur einem Gerät in dieser Kette gewährleistet dann die Vermeidung von Erdschleifen. 50 Hz-Einstreuprobleme auf den Vorverstärker des IR Detektors - vor allem durch das Netzteil des Transienten Recorders - können nur durch geschickte räumliche Anordnung des Verstärkers minimiert werden. Genauso zweckmäßig ist eine möglichst große Entfernung zwischen Meßsystem und Hauptstörquelle Dye-laser. Die so reduzierten Störrauschpegel liegen z.B. für das IR Nachweissystem innerhalb des von ihm selbst und von der Hintergrundstrahlung erzeugten weißen Rauschpegels (kleiner als 10 mV).

Die externe Triggerung der Elektronik des Transienten Recorders, wie auch der des Oszillographen, wird über das Signal einer speziellen Triggerphotodiode vorgenommen, die über einen Strahlteiler einen Teil des Dylasers detektiert. Bei Benutzung des TR ergibt sich dabei die Möglichkeit, das Signal vor Beginn des Dylaserpulses zu registrieren (Pre-trigger-Betrieb; wichtig zum Festhalten der Signalnulllinie bei langsam abfallenden Fluoreszenzsignalen).

Die gemessenen Puls- und Fluoreszenzverläufe werden im Falle des Oszillographen auf photographischem Weg festgehalten. Im Fall der Datenerfassung über den Signal Averager

wird das Signal nach hier möglicher Analyse und Manipulation auf einen Schreiber gegeben.

Da bei den Untersuchungen die relative Lage von anregendem Pumplaserpuls und resultierendem IR Laserpuls von Interesse ist (siehe Kap. 4), werden beide Signale bei Verwendung des Oszillographen im wechselseitigen Zweikanalbetrieb gemeinsam aufgenommen. Meist handelt es sich wegen der stark in Zeit und Amplitude fluktuierenden Signale etwa um 100 alternierende Aufnahmen hintereinander. Zur Kontrolle von Echtzeitkorrelationen zwischen beiden Signalen besteht die Möglichkeit der Addition beider Pulse. Diese Addition ermöglicht daneben auch den exakten Nullabgleich zweier gleich großer Signale mit entgegengesetzten Vorzeichen, wie er z.B. bei der Bestimmung der Pumplichtabsorption im Natriumdampf zu Beginn der Messung ohne Natrium vorgenommen wird.

Die zeitliche Auflösung, mit der die Signalerfassung durchgeführt werden kann, ist hauptsächlich durch die Ansprechzeiten der benutzten Detektoren (siehe Tab. 2.4) nach unten beschränkt.

● 2.4.2 Spektrale Untersuchungen ●

Da es sich bei den nachzuweisenden Signalen um gepulste, sich langsam wiederholende Ereignisse handelt, macht die Messung der Intensität dieser Signale in Abhängigkeit von variablen Größen die Benutzung eines geeigneten Integrationsverfahrens erforderlich.

Zur Aufnahme von Spektren der erzeugten IR Laserstrahlung oder zum Fahren von Anregungs- oder Transmissionsspektren wird zu diesem Zweck ein Boxcar Integrator (Mod. 162; Fa. EG+G) eingesetzt. Dieser benötigt ein zu dem sich wiederholenden gepulsten Eingangssignal synchrones Triggersignal, welches durch einen variablen Zeitversatz (Delay)

erlaubt, ein ebenfalls veränderliches 'Sample'-Intervall T (Gate) zu erzeugen. Nur während dieses Zeitintervalls liegt das so synchronisierte Eingangssignal am Integrator mit variabler Zeitkonstante RC an. Dadurch, daß die Integration nicht über die gesamte Zeit erfolgt, ist die wahre, effektive Zeitkonstante RC_{eff} des Meßsystems nicht einfach gleich der Zeitkonstante des Integrationsschaltkreises, sondern gleich RC multipliziert mit dem inversen Puls-Pausen Verhältnis (Duty Faktor). Die Ansprechzeit des Meßsystems hängt also von RC , der Gatebreite und der Repetitionsfrequenz f des Eingangssignals ($RC_{\text{eff}} = RC/Tf$) ab. Durch die bei dem Gerät bestehende Möglichkeit des exponentiellen Mitteln, in der das Ausgangssignal nach wiederholten Ereignissen asymptotisch einen stationären Wert erreicht, ist die bei der Aufnahme von Spektren erforderliche kontinuierliche Registrierung gewährleistet. Dabei wird dieser stationäre gemittelte Wert innerhalb von 0.7% in einer Zeit erreicht, die 5 effektiven Zeitkonstanten entspricht. Nicht-synchrones Rauschen wird durch dieses Mittelungsverfahren ebenfalls reduziert. Die maximal mögliche Signal-Rausch-Verhältnisverbesserung ist dabei durch den Faktor $(2N)^{1/2}$ gegeben, wobei N die Anzahl der über einen Zeitraum einer effektiven Zeitkonstante gemittelten Pulse ist ($N = RC/T$).

Da es sich bei den im Experiment zu messenden Signalen üblicherweise um $1 \mu s$ lange Pulse mit einer Wiederholfrequenz von 10 Hz handelt, wird für den Boxcar meist eine Gatebreite von $2.5 \mu s$ und eine Integrationszeitkonstante von $10 \mu s$ gewählt. Daraus ergibt sich eine für die oben beschriebene Betriebsweise und für die Anwendung (z.B. Fahren von Spektren) vernünftige, effektive Ansprechzeit von 0.25 s, sowie eine Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses um einen Faktor 8.

Durch den Einsatz des Gerätes im Zweikanalbetrieb ist es daneben möglich, zwei Signale gleichzeitig aufzunehmen oder das Verhältnis zwischen zwei Eingangssignalen zu bilden. Letzteres kann vor allem zur Kompensation von Puls-zu-

Puls-Schwankungen herangezogen werden, wie sie üblicherweise bei Untersuchungen mit dem Dyelaser auftreten.

In allen Anwendungsfällen des Boxcars wird sowohl der Pumplaser als auch der Boxcar gleichzeitig mit einem Puls-generator getriggert. Diese Methode sichert in jedem Fall trotz dadurch in Kauf zu nehmender zeitlicher Signalschwankungen, daß der verzögert einsetzende Dyelaser- oder IR Laserpuls innerhalb des durch den Boxcar erzeugten Gates liegt. Triggerung durch den Dyelaser selbst läßt durch Verzögerung in der Erzeugung des Boxcargates nur die Aufnahme von relativ zum Dyelasereinsatz gesehen späteren Ereignissen zu.

Die mit dem Boxcar Integrator möglichen spektralen Untersuchungsmethoden sind in Abb. 2.13 und 2.14 schematisch dargestellt. Dabei handelt es sich um:

- (i) Den Meßaufbau zur Aufnahme von Infrarotspektren (Abb. 2.13):

In Abhängigkeit von der IR Wellenlänge werden dabei Infrarotlaser- oder Infrarotfluoreszenzintensität in der oben beschriebenen Art vom Boxcar gemessen und auf einen Schreiber gegeben, der extern mit dem Ansteuer- und Kontrollgerät des steppermotorbetriebenen IR Monochromators synchron angetrieben wird. Parallel dazu kann über einen zweiten Kanal des Boxcar Integrators die Intensität des Dyelasers kontrolliert und ebenfalls auf dem Schreiber festgehalten werden.

- (ii) Den Meßaufbau zur Aufnahme von Anregungs- oder Transmissionsspektren (Abb. 2.14):

Hierbei werden Infrarotlaser- oder transmittierte Dyelaserintensität in Abhängigkeit von der Wellenlänge des Dyelasers bestimmt. Aus Kontroll- oder Normierungszwecken (durch Verhältnisbildung) wird im Zweikanalbetrieb des Boxcar Integrators ebenfalls

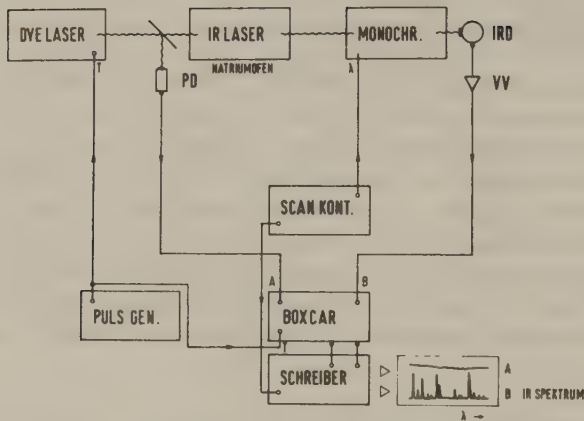


Abb. 2.14: Meßaufbau zur Aufnahme von IR Spektren (IRD: IR Detektor; VV: Vorverstärker; PD: Photodiode).

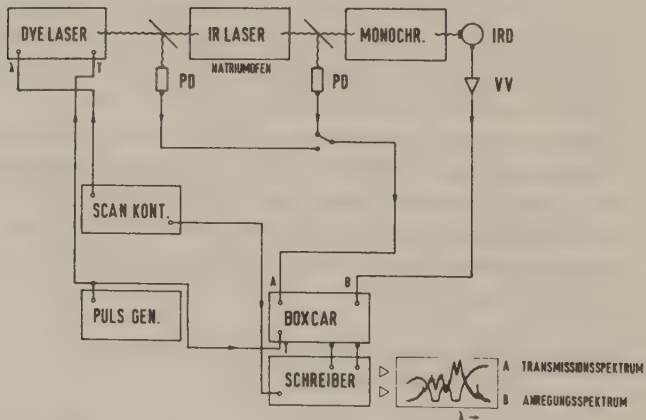


Abb. 2.15: Meßaufbau zur Aufnahme von Anregungsspektren, Transmissionsspektren und zur Bestimmung der Pump-laserabsorption.

parallel dazu die Intensität des einfallenden Dye-lasers gemessen. Die Wellenlängensteuerung des Dye-lasers übernimmt die schon besprochene Mikrocom-puterscaneinheit. Sie gestattet auch die Synchroni-sation von Scananfang und -ende mit dem die Signale aufzeichnenden Schreiber. Über die Messung der Transmission des Dyelasers kann exakt die Pumplicht-absorption durch den Na Dampf festgestellt werden. Die Signale des Dyelasers vor und hinter dem Heat-pipeofen werden dabei vor diesen Messungen ohne Na-triumdampf durch Graufilter vor den Detektoren gleich groß gemacht.

3. GRUNDLAGEN DER LASEREXPERIMENTE

In diesem Kapitel sollen die in dem untersuchten Na-Metalldampf ablaufenden Strahlungs- und Stoßprozesse näher erläutert werden. Wegen der betrachteten hohen Teilchendichten kann es sich dabei sowohl um Prozesse im atomaren als auch im molekularen System handeln (Energieniveauschema des Atoms und bekannte Potentialkurvenverläufe des Moleküls, siehe Abb. 3.1).

Zunächst soll in Kap. 3.1 näher auf die optische Anregung auf den Na D-Linien eingegangen werden. Dann werden in Kap. 3.2 mögliche Pumpmechanismen zur Erzeugung von Besetzungsinversionen zwischen höheren elektronischen Zuständen im Atom und Molekül diskutiert. Im Anschluß daran werden in Kap. 3.3 für den Fall der Anregung auf den Na D-Linien mögliche ablaufende Ionisationsprozesse erläutert. Den Abschluß bildet Kap. 3.4, mit der modellmäßigen Beschreibung der auf den in Kap. 3.2 diskutierten Populationsmechanismen aufbauenden Laserprozesse.

3.1 Anregung auf den Na D-Linien

Die Beschreibung der Wechselwirkung eines intensiven Strahlungsfeldes mit einem Ensemble von Teilchen, wie sie bei der mehr oder weniger resonanten Anregung eines optisch dicken Alkalimetall dampfes durch einen gepulsten Laser auftritt, ist ein äußerst komplexes Problem. Dabei erschwert eine Fülle von zu berücksichtigenden Einzelheiten die exakte Behandlung des zeitlich-räumlichen Strahlungstransfers: die Eigenschaften des anregenden gepulsten Lasers (zeitliches Verhalten, räumliche und spektrale Verteilung), die große optische Dicke des Dampfes (verschiedene Linienverbreiterungsmechanismen, 'Radiation Trapping'), die Möglichkeit von intensitätsabhängigen Sättigungsphänomenen und nicht zuletzt eine Reihe von Stoß- und Strahlungsprozessen (Stichworte: Energietransfer-, Ionisationsmechanismen, Re-

kombination; siehe /LMc 80/ und Kap. 3.3), die aufbauend auf der hohen Dichte angeregter Teilchen parallel zum Anregungsprozeß ablaufen und in erheblichem Maß in diesen eingreifen. Theoretische Modelle - soweit überhaupt vorhanden - behandeln meist Spezialfälle, die nur versuchen, Teilaspekte dieser Schwierigkeiten zu klären /MCA 72, Gel 81, Dai 77, Sha 81, CWM 80, MHe 82/.

Um dennoch einen Einblick in das Verhalten des Systems zu geben, soll in diesem Abschnitt unter möglichst vereinfachenden Bedingungen erläutert werden, unter welchen Umständen mit einem intensiven Laser eine homogene ausgedehnte Zone von angeregten Na Atomen im ersten Resonanzzustand (3p) erzeugt werden kann, wie sie als aktives Medium in einem Laserresonator benötigt wird.

Zunächst liegt der Gedanke nahe, das Medium durch einen auf der Linienmitte (resonant) eingestrahlten kräftigen Laser auszubleichen - zu sättigen. Dazu wird zuerst an Hand der resonanten Wechselwirkung eines Strahlungsfeldes mit einem einfachen Zwei-Niveausystem der Begriff der Sättigung eines 'einzelnen' Atoms erläutert. Danach kann über die näherungsweise Lösung der Strahlungstransfergleichung für viele Teilchen, die dann an die eingestrahlte Laserintensität gestellte Bedingung für die Sättigung des gesamten zu durchstrahlenden Dampfes abgeleitet werden. Alternativ dazu wird, im Fall eines zum Erreichen der Sättigung bei resonanter Einstrahlung zu schwachen Lasers, die Möglichkeit der Anregung des Metaldampfes durch Einstrahlung des Lasers auf dem Flügel der Absorptionslinie diskutiert. Neben den im Experiment vorliegenden Linienformen wird dabei auch auf den Begriff der Äquivalenten Breite eingegangen. Den Abschluß des Abschnittes bildet eine Beschreibung des 'Radiation Trapping'-Problems.

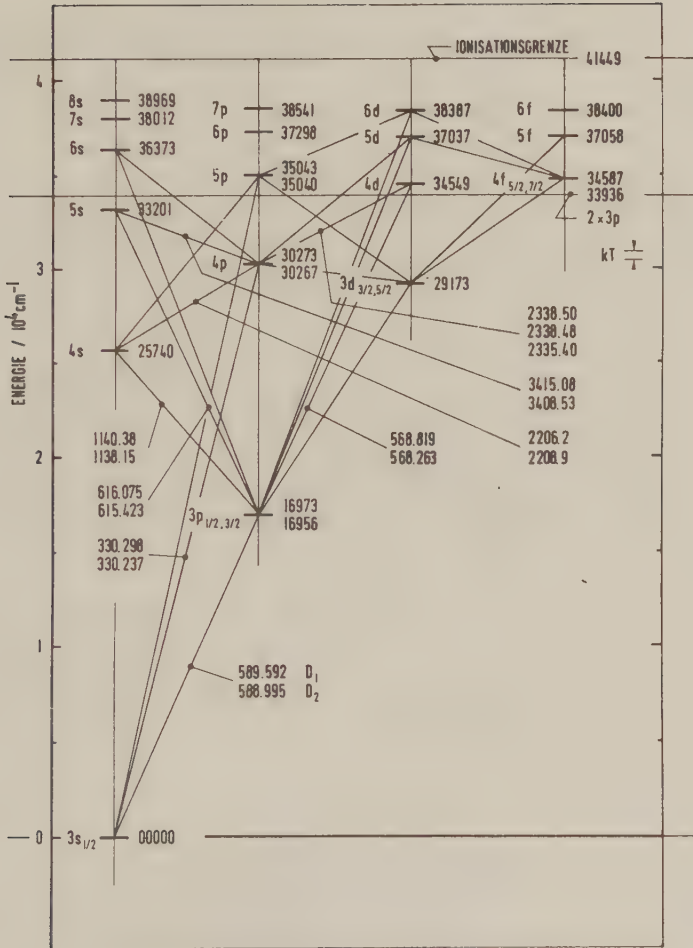


Abb. 3.1.b: Na Grotrian Diagramm in cm^{-1} mit einigen wichtigen Übergangswellenlängen in nm.

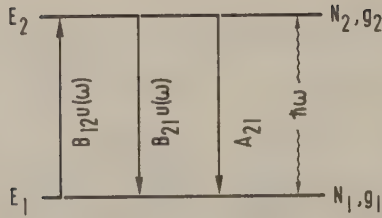


Abb. 3.2.a: Zwei - Zustandssystem mit Raten für spontane und stimulierte Emission und Absorption.

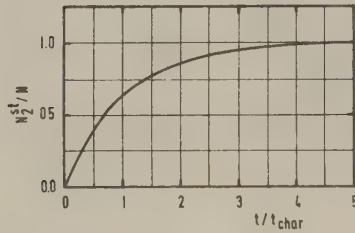


Abb. 3.2.b: Anzahl der in den oberen Zustand beförderten Atome N_2 in Abhängigkeit von der Zeit (in Einheiten von $t_{\text{char}} = (A + 2Bu)^{-1}$).

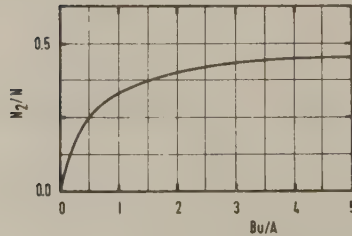


Abb. 3.2.c: Bruchteil der Atome im angeregten Zustand in Abhängigkeit von der eingestrahlten Energiedichte (Einheiten von Bu/A) für den stationären Zustand ($t \gg t_{\text{char}}$ in Abb. 3.2.b).

- 3.1.1. Sättigungsphänomene beim resonanten Pumpen ●
- 3.1.1.1. Zwei-Zustandssystem, Sättigung im Fall eines ein- ●
zelnen Atoms

Die Wechselwirkung zwischen einem Strahlungsfeld und N identischen Atomen in einem Gas wird grundlegend durch die Einstein'sche Theorie der Absorption und Emission /Ein 17, Cor 77/ beschrieben. Nehmen wir an, das Atom habe zwei Zustände: einen Grundzustand mit der Energie E_1 und einen angeregten Zustand mit der Energie E_2 mit dem scharfen Energieunterschied $\hbar\omega = E_2 - E_1$ (siehe Abb. 3.2a). Beide sollen entsprechende Besetzungen N_1 und N_2 sowie Entartungsfaktoren g_1 und g_2 besitzen. Wird nun ein breitbandiges Strahlungsfeld mit einer spektralen Energiedichte $u(\omega)$ eingestrahlt, so gilt für die zeitliche Änderung der Besetzungen N_1 und N_2 :

$$dN_2/dt = -dN_1/dt = -(N_2 - (g_2/g_1)N_1)B_{21}u(\omega) - N_2A_{21} \quad (3.1)$$

wobei

$$B_{12} = (g_2/g_1)B_{21} \quad (3.2)$$

B_{12} und B_{21} : Einsteinkoeffizienten für stimulierte Absorption und Emission:

A_{21} : Einsteinkoeffizient für spontane Emission

$$B_{21} = (\pi^2 c^3 / \hbar \omega^3) (g_2/g_1) A_{21} \quad (3.3)$$

c : Lichtgeschwindigkeit.

Zu allen Zeiten sei Teilchenzahlerhaltung

$$N_1 + N_2 = N \quad (3.4)$$

gefordert.

Befinden sich zum Zeitpunkt $t = 0$ alle Atome im Grundzustand und wird von diesem Zeitpunkt ab ein Feld mit zeitlich und räumlich konstanter Leistung eingeschaltet, dann läßt sich (3.1) mit Verwendung von (3.4) lösen. Mit der Annahme, daß $g_1 = g_2$ und damit $B_{12} = B_{21} = B$, und der Vereinfachung $A_{21} = A$, erhält man für die zeitliche Abhängigkeit der Besetzung des angeregten Zustands (siehe Abb. 3.2b):

$$N_2(t) = (NBu / (2Bu + A)) (1 - \exp(-(2Bu + A)t)). \quad (3.5)$$

Die Lösung für $N_1(t)$ erhält man mit (3.5) aus (3.4). Für $(A + 2Bu)t \ll 1$ steigt also N_2 linear mit der Zeit an:

$$N_2(t) = NBu t. \quad (3.6)$$

Für Zeiten $t \gg t_{\text{char}}$ (wobei $t_{\text{char}} = (A + 2Bu)^{-1}$) hingegen, wird ein stationärer Wert erreicht:

$$N_2^{\text{st}} = NBu / (A + 2Bu). \quad (3.7)$$

Soll dieser Wert in einer Zeitspanne $t \approx 1/A$ erreicht werden, so muß $Bu \gg A$, d.h. die induzierten Prozesse müssen schnell gegenüber dem spontanen Zerfall sein.

In Abb. 3.2c ist das Verhältnis N_2/N nach dem Erreichen des stationären Zustandes gegen das Verhältnis von induzierter zu spontaner Emissionsrate Bu/A aufgetragen. Für den Fall schwacher Strahlungsquellen ($Bu \ll A$) befinden sich demnach fast alle Atome im Grundzustand. Bei der Einstrahlung von starken Feldern dagegen ($Bu \gg A$), nähert sich N_2/N dem Grenzwert $1/2$. Dieses nichtlineare Verhalten bezeichnet man als Sättigung. Als spektrale Sättigungsenergiedichte u_{sat} wird die Energiedichte definiert, bei welcher 50% des Grenzwertes erreicht wird:

$$2Bu_{\text{sat}} = A. \quad (3.8)$$

Diese Definition führt mit (3.3) und der Verwendung des Zusammenhangs zwischen Intensität J und spektraler Energiedichte u

$$J = (\pi/2) c u(\omega) \delta\omega_L \quad (3.9)$$

(mit $\delta\omega_L$: Bandbreite des Strahlungsfeldes (FWHM)), zu einer Sättigungsintensität

$$J_{\text{sat}} = (\pi/\lambda^2) (g_1/g_2) \hbar \omega \delta\omega_L, \quad (3.10)$$

die bemerkenswerterweise unabhängig von der Übergangswahrscheinlichkeit, der Linienbreite und der Teilchenzahl ist. Dies gilt natürlich nur unter den vorgenannten Bedingungen: breitbandige Anregung, scharfe Übergangsfrequenz und keine Abnahme der Strahlintensität über die Länge der Anregungszone. Es handelt sich also um den Grenzfall der Sättigungsintensität für ein 'einzelnes' Atom!

Damit erhält man für einen Übergang mit der Wellenlänge von $\lambda = 589.6 \text{ nm}$ ($3^2S_{1/2} - 3^2P_{1/2}$ im Natrium) und einer in den Untersuchungen üblichen Bandbreite von $\delta\omega_L \approx 2\pi \times 35 \text{ GHz}$ eine Sättigungsintensität von

$$J_{\text{sat}} \approx 66 \text{ W/cm}^2. \quad (3.11)$$

(zum Vergleich: für einen schmalbandigen Laser mit $\delta\omega_L \ll \delta\omega_{\text{nat}} = 60 \text{ MHz}$ ergibt sich eine Sättigungsintensität von $J_{\text{sat}} = (\pi/\lambda^2) (g_1/g_2) \hbar \omega \delta\omega_{\text{nat}} \approx 18 \text{ mW/cm}^2$).

● 3.1.1.2 Strahlungstransfergleichung, Sättigung im Vielteilchenfall ●

Die obigen Betrachtungen beziehen sich auf Atome in einem Feld mit räumlich konstanter Intensität. Im allgemeinen wird beim Durchgang eines Lichtstrahles durch ein gasförmig ausgedehntes Medium (Volumen V , Länge l) die Intensität des

Strahls merklich abschwächt.

Nimmt man zeitlich stationäre Bedingungen an, so folgt mit (3.1) unter der Annahme von $g_1 = g_2$ und damit $B_{21} = B_{12} = B$:

$$N_2 A = (N_1 - N_2) B u(\omega). \quad (3.12)$$

Die Rate, mit der Energie durch spontane Emission aus dem Strahl in den gesamten Raumwinkel verloren geht, ist dann also gerade gleich der Differenz der Raten, mit der Energie durch Absorption aus dem Strahl entnommen und Energie durch stimulierte Emission zurück in den Strahl fließt. Für die räumliche Abhängigkeit der spektralen Intensität $I(\omega) = cu(\omega)$ folgt somit die bekannte Gleichung für den Strahlungstransfer (siehe /Lou 73/)

$$dI(\omega)/dl = -(n_1 - n_2) g(\omega) B \hbar \omega I(\omega) / c. \quad (3.13)$$

Dabei soll $g(\omega)$ nun die Linienform des Übergangs beschreiben. n_1 und n_2 sind die Teilchendichten von Grund- und angeregtem Zustand. Im allgemeinsten Fall ist diese Abhängigkeit nicht trivial, hängen doch n_1 und n_2 selbst von $I(\omega)$ ab. Dies wird deutlich, wenn man die Gleichung mit Hilfe von (3.12) und (3.7) umschreibt:

$$(1/I(\omega)) (1 + 2BI(\omega)/Ac) dI(\omega)/dl = -ng(\omega) B \hbar \omega / c \quad (3.14)$$

(dabei ist n die Gesamtteilchendichte und dl ein infinitesimales Längenelement).

Sie läßt sich für zwei Grenzfälle einfach lösen:

(1) Schwache Strahlung: $BI(\omega) \ll A$

Dann ist

$$I(l) = I_0 \exp(-kl), \quad (3.15)$$

mit dem Absorptionskoeffizienten

$$k(\omega) = n g(\omega) B \hbar \omega / c. \quad (3.16)$$

(2) Starke Strahlung: $B I(\omega) \gg A$
mit der Lösung

$$I(l) = I_0 - (n/2) g(\omega) A \hbar \omega l. \quad (3.17)$$

Bei (3.15) handelt es sich um das bekannte Lambert-Beer'sche Absorptionsgesetz, nach dem also schwache Strahlung exponentiell mit zunehmender Laufstrecke im Medium abgeschwächt wird. Starke Strahlung unterliegt gemäß (3.17) einer linearen Abnahme, wobei hier die Verlustrate nur durch die spontane Emission bestimmt wird.

Soll in diesem Fall das gesamte Medium in Sättigung gebracht werden (im einfachsten Fall gleicher Entartung von Grund- und angeregtem Zustand: also 50% aller Atome im angeregten Zustand), so gilt nun mit (3.17) eine ganz andere Bedingung als im Falle eines 'einzelnen' Atoms: Die Strahlung muß zumindest durch das gesamte Medium dringen! Daraus folgt, daß die spektrale Sättigungsintensität die Bedingung

$$I_0^{\text{sat}}(\omega) > (n/2) g(\omega) A \hbar \omega l \quad (3.18)$$

erfüllen muß. Will man also mit einem breitbandig eingestrahlten Laser (Lorentzprofil mit Bandbreite $\delta\omega_L$) eine Na Dampfzone mit der Länge l auf der Mitte der D_1 -Linie (Übergang $3^2S_{1/2} - 3^2P_{1/2}$ mit Linienbreite $\delta\omega_a$) sättigen, so muß für die eingestrahlte Intensität J_0 gelten:

$$J_0^{\text{sat}}(\omega_0) > (\delta\omega_L / \delta\omega_a) (n/2) A \hbar \omega_0 l. \quad (3.19)$$

Bei den in dieser Arbeit benutzten typischen Bedingungen

$$n_{\text{Na}} \approx 10^{16} \text{ cm}^{-3}$$

$$\delta \nu_a \approx 2 \text{ GHz} \quad (\text{siehe folgendes Kapitel})$$

$$\delta \nu_L \approx 35 \text{ GHz}$$

ergibt sich somit

$$J_O^{\text{sat}}(\omega_O) > 2 \times 10^6 (1/\text{cm}) \text{ W/cm}^2. \quad (3.20)$$

Da die Intensität des zur Verfügung stehenden Lasers maximal 10^5 W/cm^2 beträgt, läßt sich die maximale Eindringtiefe zu etwa 0.5 mm abschätzen. Die Methode, durch Sättigung aller Atome in einem Volumen eine lange, homogene Dampfzone zu erzeugen, scheidet also in unserem Fall aus.

● 3.1.2 Anregung auf den Flügeln der Absorptionslinie ●

Das Experiment wird unter Bedingungen (Dampftemperaturen etwa 600 - 800 K, Dampfdrucke 0.1 - 10 mbar) durchgeführt, bei welchen die 3s - 3p Resonanzlinien durch die thermische Bewegung der Teilchen und durch Stöße zwischen den Teilchen verbreitert sind. Dabei dominieren Doppler- und Resonanzverbreiterung über die natürliche Linienverbreiterung. Die Beschreibung der Linienform /MZe 34/ erfolgt im Fall der Dopplerverbreiterung durch ein Gaußprofil

$$g_D(\omega) = (\ln 2/\pi)^{1/2} (2/\delta \omega_D) \exp\{-\ln 2((\omega - \omega_O)/\delta \omega_D)^2\} \quad (3.21)$$

mit der Linienbreite (FWHM)

$$\delta \omega_D = \omega_O (8kT \ln 2 / m_a c^2)^{1/2} \quad (3.22)$$

(m_a : Atommasse, c : Lichtgeschwindigkeit, k : Boltzmannkonstante). Im Fall der resonanten Selbstverbreiterung durch ein Lorentzprofil

$$g_L(\omega) = (1/2\pi) \delta\omega_c / ((\omega - \omega_0)^2 + (\delta\omega_c/2)^2) \quad (3.23)$$

mit der Linienbreite $\delta\omega_c$ (FWHM)

$$\delta\omega_c = k_{Br} n \quad (3.24)$$

(wobei k_{Br} die Ratenkonstante für Resonanzverbreiterung und n die Dichte der stoßenden Teilchen ist). In beiden Fällen gilt die Normierung

$$\int g(\omega) d\omega = 1. \quad (3.25)$$

Mit (3.16) und (3.3) kann man für die jeweilige Variation der Absorptionskoeffizienten mit der Frequenz ν schreiben:

$$k_D(\nu) = k_D^0 \exp(-\ln 2 (2\pi(\nu - \nu_0)/\delta\omega_D)^2) \quad (3.26)$$

$$\text{mit } k_D^0 = (2/\delta\nu_D) (\ln 2/\pi)^{1/2} (\lambda^2/8\pi) (g_2/g_1) A_n \quad (3.27)$$

$$\text{und } k_L(\nu) = k_L^0 \delta\omega_c / (2\pi(\nu - \nu_0)^2 + (\delta\omega_c/2)^2) \quad (3.28)$$

$$\text{mit } k_L^0 = (\lambda^2/8\pi) (g_2/g_1) A_n. \quad (3.29)$$

In Tab. 3.1 sind zur Verdeutlichung der Größenverhältnisse für vorgenannte Bedingungen die jeweiligen Linienbreiten aufgeführt. Das Gesamtprofil ergibt sich aus der Faltung beider Profile, dem sogenannten Voigt-Profil (siehe z.B. /Cor 77/).

Bei den hohen Dampfdichten (üblicherweise um 1 mbar) ist der Absorptionskoeffizient in der Linienmitte und damit die optische Dicke $k_0 l$ /Cor 77/ so hoch ($\sim 10^5$ (1/cm) für das Zentrum der D_1 -Linie), daß selbst - wie im vorhergehenden Kapitel dargestellt - die in den Untersuchungen maximal zur Verfügung stehende Intensität des Lasers nicht ausreicht, um den Dampf durch Ausbleichen über einige cm zu durchdringen.

Tab 3.1: Typische Linienbreiten der Na D-Linien

T (K)	p (mbar)	n (cm ⁻³)	$\delta\nu_C^*$ (GHz)		$\delta\nu_D$ (GHz)
			D ₁	D ₂	
618	10 ⁻¹	1.17 x 10 ¹⁵	0.057	0.037	1.892
700	1	1.04 x 10 ¹⁶	0.508	0.773	2.014
807	10	8.99 x 10 ¹⁶	4.376	6.682	2.162

$$^* \delta\omega_C = 2\pi \delta\nu_C = k_{Br} n, \quad k_{Br}^{D_1} = 3.07 \times 10^{-7} \text{ cm}^3/\text{s}$$

$$k_{Br}^{D_2} = 4.67 \times 10^{-7} \text{ cm}^3/\text{s} \quad \text{nach /Hue 82/}$$

$$\text{natürliche Linienbreite: } \delta\nu_N = 10^7 \text{ Hz} \quad \text{nach /WSM 69/}$$

Interessant sind deshalb im Hinblick auf die Erzeugung einer homogenen angeregten Natriumdampfzone nur die Flügel des aktuellen Linienprofils. Da das Gauß'sche Profil wie $\exp(-(\Delta\nu)^2)$ absinkt, das Lorentz'sche dagegen nur mit $(\Delta\nu)^{-2}$, werden die Flügel der Absorptionslinien im wesentlichen durch die Lorentzkomponente dominiert. Man kann zeigen /Hue 82/, daß für Frequenzen, die etwa 10 GHz vom Linienzentrum entfernt sind, der Wert des Absorptionskoeffizienten, bestimmt über das Lorentzprofil, schon innerhalb von 4% mit dem über das Voigtprofil bestimmten übereinstimmt. Für den Absorptionskoeffizienten im Flügel gilt dann also:

$$k_L(\nu) = (\lambda^2/8\pi) (g_2/g_1) A n \delta \omega_c / (2\pi(\nu - \nu_0)^2). \quad (3.31)$$

Damit kann nun die Frequenz bestimmt werden, bei der die Dampfzone auf dem Flügel der Na D-Linie optisch so dünn ($k(\nu)l < 1$) wird, daß auch schwache Strahlung gemäß dem Lambert-Beer'schen Gesetz (Glg. (3.15)) die gesamte Dampfzone mit der Länge l durchdringen kann. Da es das Ziel ist, eine homogene Anregungszone über die gesamte Länge zu produzieren, muß dann die Transmission durch den Dampf möglichst hoch sein. Allgemein gilt mit (3.31) für den Frequenzabstand $\Delta\nu$ von der Linienmitte zum Erreichen einer bestimmten Transmission $T = I(l)/I_0$ auf dem Linienflügel

$$\Delta\nu = ((\lambda^2/32\pi^3) (g_2/g_1) A n^2 k_{Br}^{-1} / \ln T)^{1/2}. \quad (3.32)$$

Bei einer Dampfdichte $n = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, einer Dampfänge $l = 3.4 \text{ cm}$ und einer gewünschten Transmission von 80% auf den Flügeln der Na D_1 -Linie muß also etwa 340 GHz oder 0.4 nm entfernt von der Linienmitte mit dem Laser eingestrahlt werden. Grob abgeschätzt ergibt sich dann stationär betrachtet, etwa bei einer im Experiment typischen Laserintensität $J = 10^5 \text{ W/cm}^2$ mit einer Lebensdauer $\tau = 16 \text{ ns}$ des oberen Zustandes ($\text{Na}(3p_{1/2})$), eine Dichte angeregter Atome n_{3p} von ungefähr $3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ ($n_{3p} = k(\nu)J\tau/h\nu$).

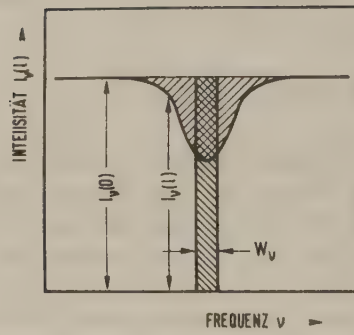


Abb. 3.3: Zur Definition der Äquivalenten Breite W_ν einer Absorptionslinie (die schraffierten Flächen sind gleich groß).

● 3.1.3. Äquivalente Breite ●

In diesem Zusammenhang sei auch das Konzept der Äquivalenten Breite (siehe z.B. /MZe 34, Tho 74/) einer Absorptionslinie erwähnt, die es neben der groben Abschätzung der Breite des Transmissionsprofils auch erlaubt, die Länge des durchstrahlten Dampfes zu bestimmen.

Die Äquivalente Breite einer Linie wird über

$$W_\nu = \int (I_\nu(0) - I_\nu(l)) / I_\nu(0) d\nu \quad (3.33)$$

definiert. Dabei ist $I_\nu(0)$ die eingestrahlte Intensität mit der Frequenz ν und $I_\nu(l)$ die transmittierte Lichtintensität nach einer Länge l . Aus Abb. 3.3 wird der Name dieser Größe verständlich: Es ist die in Frequenzeinheiten ausgedrückte Breite eines Rechtecks der Höhe $I_\nu(0)$, dessen Fläche gleich der Fläche unter der Absorptionslinie ist. Im allgemeinen handelt es sich bei dem gemessenen Profil um eine Faltung aus tatsächlichem Absorptionsprofil und Apparateprofil (entweder Monochromator-Transmissionsprofil bei Messung mit breitbandiger Strahlungsquelle, oder Linienprofil eines mehr oder weniger schmalbandigen Lasers, der über die Absorptionslinie durchgestimmt werden kann). Die Fläche des gemessenen Profils ist dabei unabhängig vom Apparateprofil /MZe 34/.

Ist der Dampf optisch dünn ($k_\nu l \ll 1$), so ist die Äquivalente Breite linear mit der Dichte n und der Länge l verknüpft.

$$W_\nu = \int (1 - e^{-k_\nu l}) d\nu \approx \int k_\nu l d\nu = (\lambda^2 / 8\pi) (g_2 / g_1) A n l. \quad (3.34)$$

Bei hohen Dichten dagegen ist der Dampf optisch dick, und unter der Annahme eines dann vorherrschenden Lorentzprofils kann mit Gln. (3.15) und (3.31) gezeigt werden, daß sie proportional zum Produkt aus Dichte und der Wurzel aus der Länge ist:

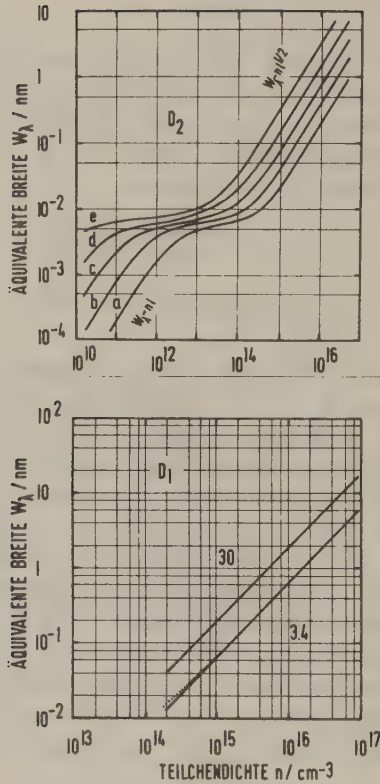


Abb. 3.4: Äquivalente Breite als Funktion der Na Teilchendichte
oben: für die D_2 -Linie im Bereich niedriger und hoher Dichte unter Verwendung eines Voigtprofils (nach /Hue 82/, Dampfängen in cm: $a=0.1$, $b=0.4$, $c=1.6$, $d=5.4$, $e=25.6$)
unten: für die D_1 -Linie im Bereich hoher Dichte unter Verwendung eines reinen selbstverbreiterten Lorentzprofils (Gl. (3.37)) für 2 im Experiment benutzte Dampfängen in cm (punktierte Linie wie oben als Vergleich).

$$W_v = ((\lambda^2/8\pi^2)(g_2/g_1)n^2 A_{k_{Br}})^{1/2}. \quad (3.35)$$

In diesem Bereich ergibt sich dann für die Na D-Linien

$$(W_\lambda = (\lambda^2/c)W_v):$$

$$W_\lambda^{D_2}/nm = 5.879 \times 10^{-17} (n/cm^{-3}) (l/cm)^{1/2} \quad (3.36)$$

$$W_\lambda^{D_1}/nm = 3,381 \times 10^{-17} (n/cm^{-3}) (l/cm)^{1/2}. \quad (3.37)$$

Für die D_1 -Linie ist diese Abhängigkeit für zwei verschiedene Längen im in der Arbeit interessierenden Druckbereich in Abb. 3.4 dargestellt. Die generelle Variation der Äquivalenten Breite mit dem Druck für die D_2 -Linie ist zur Verdeutlichung der oben diskutierten Grundzüge ebenfalls in Abb. 3.4 wiedergegeben. Die Vermessung der Äquivalenten Breite (in Kap. 2.1.4.5 beschrieben) gestattet es nach Glg. (3.35), bei Kenntnis der Dampfdichte die Länge der homogenen Dampfzone zu bestimmen.

● 3.1.4. 'Radiation Trapping' ●

Bei den in dieser Arbeit vorherrschenden Drucken und dadurch bedingter hoher optischer Dicke ($kl \gg 1$) des Dampfes auf der Resonanzlinie, blieb bisher unberücksichtigt, daß die resonant emittierten Fluoreszenzphotonen erst nach einer großen Zahl von wiederholten Emissions- und Reabsorptionsakten aus dem Dampf heraus gelangen können. Dies führt zu einer effektiven Verlängerung der Lebensdauer oder Verringerung der Zerfallsrate der Atome

$$A_{eff} = gA_{nat}, \quad (3.38)$$

wobei A_{nat} die natürliche Zerfallsrate in Abwesenheit dieses, als resonanter Strahlungseinfang oder 'Radiation Trapping' bezeichneten Phänomens ist, und g , der sogenannte 'Escapefaktor', die Wahrscheinlichkeit angibt, mit der ein Photon den Dampf

verlassen kann (das Reziproke der Zahl von Emissionen und Reabsorptionen eines Photons vor dem Verlassen des Dampfes). Dieser Faktor hängt natürlich von der Geometrie der Dampfzone und vom Linienverbreiterungsmechanismus ab.

'Radiation Trapping' wurde erstmals experimentell im Jahre 1905 von Wood /Woo 05/ beobachtet und später ausführlich von Holstein /Hol 47, Hol 51/ theoretisch behandelt. Er zeigt, daß im Fall großer optischer Dicke die Lösung des Problems durch die Beschreibung als Strahlungsdiffusionsprozeß unter der Annahme einer mittleren freien Weglänge /Mil 32/ für ein Photon ungeeignet ist, da der Absorptionskoeffizient über das Profil der atomaren Linien stark variiert. Die Wahrscheinlichkeit, daß ein Fluoreszenzphoton mit der Frequenz ν ohne Absorption eine Strecke ρ durchläuft, ist vielmehr durch den Transmissionskoeffizient $T(\rho)$ gegeben:

$$T(\rho) = \int P(\nu) \exp(-k(\nu)\rho) d\nu. \quad (3.39)$$

Wobei $k(\nu)$ der Absorptionskoeffizient und

$$P(\nu) = k(\nu) / \int k(\nu) d\nu \quad (3.40)$$

das Frequenzspektrum der von einem gegebenen Volumenelement emittierten Strahlung ist. Der Faktor g kann dann mittels einer Strahlungsdiffusionsgleichung, die die zeitliche, räumliche Variation der Population des angeregten Zustandes in Beziehung zu diesem Transmissionskoeffizienten setzt, bestimmt werden. Dies ist analytisch nur für einige wenige ideale Geometrien und gewisse Näherungen möglich /Hol 51/ (siehe auch: /vTr 76, Bez 78, GLy 75/).

Im Fall der reinen Doppler- und Stoßverbreiterung und mit der Bedingung $k_0 \rho \gg 1$ folgt nach Holstein:

$$T(\rho) = 1/k_D^0 (\pi \ln k_D^0 \rho)^{1/2} \quad (3.41)$$

für Dopplerverbreiterung mit

$$k_D^0 = (2/\delta v_D) (\ln 2/\pi)^{1/2} (\lambda^2/8\pi) (g_2/g_1) A n \quad (3.27)$$

und

$$T(\rho) = 1/(\pi k_p \rho)^{1/2} \quad (3.42)$$

für Stoßverbreiterung mit

$$k_p = (\lambda^2/2\pi) (g_2/g_1) n A / \delta \omega_c \quad (3.43)$$

(k_p ist der Absorptionskoeffizient auf der Linienmitte; siehe (3.28)). Mit $\delta \omega_c = n k_{Br}$ ist also im Fall von reiner Selbstverbreiterung k_p unabhängig von n . Da im Experiment durch den Pumplaser eine zylinderförmige Zone von angeregten Atomen erzeugt wird, ist bei der Lösung der Strahlungsdiffusionsgleichung sinnvollerweise die Geometrie des unendlich langen Zylinders vorgegeben. Dies ist vor allem dann in guter Näherung erfüllt, wenn die Länge l des Zylinders mindestens um einen Faktor 10 größer ist als dessen Radius r /Bez 78/.

Wie jede Beschreibung eines Diffusionsprozesses stellt auch die durch

$$\begin{aligned} dn(\vec{r}, t)/dt = -An(\vec{r}, t) - A/n(\vec{r}, t) (4\pi\rho^2)^{-1} (dT(\rho)/d\rho) d\vec{r}' \\ \rho = |\vec{r}' - \vec{r}| \end{aligned} \quad (3.44)$$

beschriebene Strahlungsdiffusionsgleichung (siehe /Hol 51/) mit dem Ansatz

$$n(\vec{r}, t) = \sum_i c_i n_i(\vec{r}) \exp(-g_i A t) \quad (3.45)$$

für die zeitlich räumliche Variation der Dichte $n(\vec{r}, t)$ der angeregten Spezies ein Eigenwertproblem dar. Für den funda-

mentalen Zerfallsmode mit dem Escapefaktor $g_o = g$ gibt Holstein für die Geometrie des unendlich langen Zylinders mit Radius r folgende Lösungen an (höhere Zerfallsmoden (siehe z.B. /vTr 76/) brauchen im Experiment nicht berücksichtigt zu werden, da die Anregung des durch den TEM₀₀ IR Laserresonatormode im Na Dampf vorgegebenen Zylindervolumens durch den Pumplaser so vorgenommen wird, daß die anfängliche Verteilung der angeregten Atome durch annäherndes Modematching der Verteilung des fundamentalen Diffusionsmode in bezug auf diesen Zylinder entspricht):

$$g = 1.60/k_D^O r (\pi \ln(k_O r))^{1/2} \quad (3.46)$$

für reine Dopplerverbreiterung und

$$g = 1.115/(\pi k_p r)^{1/2} \quad (3.47)$$

für reine Stoßverbreiterung.

Meist liegen jedoch experimentelle Bedingungen vor, wo beide Verbreiterungsmechanismen gleichzeitig vorkommen (so auch in diesem Experiment). Da prinzipiell Strahlung nur weit auf den Linienflügeln, wo die Bedingung $k(v)r \leq 1$ erfüllt ist, aus dem Dampf gelangen kann (Strahlung näher zur Linienmitte hin wird total reabsorbiert), bestimmt der Verbreiterungsmechanismus den Diffusionsprozeß, der auf den Flügeln überwiegt. Wie schon in Kap. 3.1.2 bemerkt, dominiert auf dem Flügel die Stoßverbreiterung, und das selbst noch bei Drucken, die viel kleiner sind als der Druck, bei welchem die Linienbreiten von Stoß- und Dopplerverbreiterungen gleich groß sind. Für unsere experimentelle Situation, dem Trapping der 3p-3s Resonanzfluoreszenz im Natrium bei einem typischen Zylinder-radius von 0.15 cm, ist damit die Gleichung (3.47) noch hinab bis auf Grundzustandsdichten von etwa 10^{15} cm^{-3} gültig. In diesem Fall ist dann auch, wie oben festgestellt, der Escapefaktor g unabhängig von der Teilchendichte.

Für einen Radius von 0.15 cm erhält man für die D_1 -Linien ($\lambda = 589.592$ nm, $g_1 = g_2 = 2$, $A_{\text{nat}} = 6.27 \times 10^7$ Hz, $k_{\text{Br}}^{D_1} = 3.07 \times 10^{-7}$ cm³/s)

$$k_p^{D_1} = 1.13 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$$

$$g^{D_1} = 4.83 \times 10^{-3} \quad (3.48)$$

und für die D_2 -Linie ($\lambda = 588,995$ nm, $g_1 = 2$, $g_2 = 4$, $A_{\text{nat}} = 6.3 \times 10^7$ Hz, $k_{\text{Br}}^{D_2} = 4.67 \times 10^{-7}$ cm³/s)

$$k_p^{D_2} = 1.49 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$$

$$g^{D_2} = 4.21 \times 10^{-3}. \quad (3.49)$$

(Daten für A_{nat} aus /WSM 69/ und für k_{Br} aus /Hue 82/.)

Die effektive Lebensdauer der angeregten Atome beträgt also

$$\tau_{\text{eff}}^{D_1} = 3.3 \times 10^{-6} \text{ s}$$

und

$$\tau_{\text{eff}}^{D_2} = 3.77 \times 10^{-6} \text{ s}. \quad (3.50)$$

Diese Zeit, mit der ein einmal erzeugtes angeregtes Atom effektiv im Anregungsvolumen verbleibt, beeinflusst natürlich auch den Anregungsprozeß des Dampfes durch den Laser und muß bei den die Wechselwirkung beschreibenden Ratengleichungen berücksichtigt werden. Dies gilt sowohl für den Fall der resonanten Anregung auf dem Linienzentrum als auch für die nichtresonante Anregung auf den Flügeln der Linie. Damit ist es bei dann entsprechend höherer Na(3p) Dichte leichter, das Medium mit einer vorgegebenen Strahlungsintensität zu sättigen (siehe Kap. 3.1.1.2). In erster Linie kommt es jedoch darauf an, in welcher Zeit in der Besetzungsdifferenz zwischen angeregtem und Grundzustand ein Sättigungszustand erreicht werden soll. Soll dies in einer mit der natürlichen Lebensdauer vergleichbaren Zeitspanne erfolgen, so bleibt

die über die natürliche Linienbreite berechnete Sättigungsintensität (Gl. (3.19)) die richtige Größe zur Abschätzung der erforderlichen Laserleistung.

Eine exakte Behandlung des Sättigungsphänomens - wie auch des gesamten Anregungsprozesses für resonantes und nichtresonantes Pumpen - muß neben den bisher besprochenen Strahlungsprozessen aber auch Stoßprozesse berücksichtigen, die die zeitliche Entwicklung der Besetzung der Zustände mitbeeinflussen. So gilt beispielsweise für die Population des angeregten Zustandes.

$$dn_2/dt = -(n_2 - (g_2/g_1)n_1)B_{21}u(\omega) - (A_{\text{eff}} + R(t))n_2, \quad (3.51)$$

wobei $R(t)$ die durch diese Stoßprozesse erzeugte Depopulationsrate dieses Zustandes sein soll. Dabei handelt es sich, wie schon zu Beginn des Kapitels angedeutet, um Prozesse, die sowohl parallel zueinander, als auch aufeinander aufbauend ablaufen können und im wesentlichen auf der hohen Dichte der angeregten Teilchen basieren. Da es dadurch in erheblichem Maße zur Erzeugung von höher angeregten Teilchen oder gar zu Ionisationsphänomenen in Dampf kommen kann (siehe Kap. 3.3), ist die Teilchenzahlerhaltung innerhalb des durch das Strahlungsfeld gekoppelten einfachen Zwei-Zustandssystems von Grund- und angeregtem Zustand nicht mehr gewährleistet. Diese oben pauschal eingeführte Entvölkerungsrate $R(t)$ hat prinzipiell zwei den Strahlungstransfer betreffende Effekte: Zum einen eine Verkürzung der totalen Lebensdauer des angeregten Zustandes (hauptsächlich durch Quenchprozesse), was der Verlängerung durch Radiation Trapping entgegenarbeitet, und eine Sättigung des Mediums wieder schwieriger werden läßt. Zum anderen aber auch das 'Herauswerfen' von Atomen aus dem Anregungsprozeß (hauptsächlich durch Ionisationsprozesse), was soweit führen kann, daß es zu einem zusätzlichen Ausbleicheffekt kommt, der auf der mehr oder weniger starken Entleerung des Grundzustandes durch mehr oder weniger starke

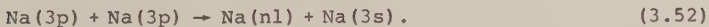
Ionisation des Mediums basiert ('Ionisationsinduziertes Ausbleichen, siehe /LMc 76/). Gerade diese Effekte und deren kompliziertes zeitlich räumliches Verhalten machen eine allgemeine Beschreibung des Strahlungstransfers so schwierig /MCS 81, CNM 81, MHe 83, GSh 81/. Daneben bewirken Stöße auch, daß man in Gl. (3.51) tatsächlich den Faktor g_2/g_1 benutzen muß (Stoßdesorientierung der angeregten Atome, so daß das eigentlich polarisierte und damit gerichtete Feld wie ein räumlich isotropes wirkt).

● 3.2 Selektive Anregung von höheren Zuständen im Natrium ●

Als möglicher Pumpmechanismus für höhere Zustände (5s, 4d) im Natriumatom soll im Folgenden zunächst der als 'Energy Pooling' bekannte Energietransferprozeß beim Stoß zweier Na(3p) Atome, erzeugt durch den im vorhergehenden Kapitel diskutierten optischen Anregungsprozeß, beschrieben werden. Danach werden dann zwei direkte optische Anregungsmethoden des 5s Zustandes vorgestellt: die resonante sowie die stoß-induzierte Zwei-Photonenabsorption.

● 3.2.1 'Energy Pooling'-Stöße zwischen zwei angeregten Atomen ●

Beim Stoß zweier angeregter Na Atome im 3p Zustand ist ein Energietransferprozeß von einem Atom auf das andere unter Bildung eines höher angeregten Atoms im Zustand nl möglich



Dieser Energietransferprozeß ist erstmals von Allegrini et al. /AAK 76/ experimentell durch die Beobachtung von Fluoreszenz solch hoher angeregter Zustände nach der resonanten Anregung auf den D-Linien nachgewiesen worden und hat

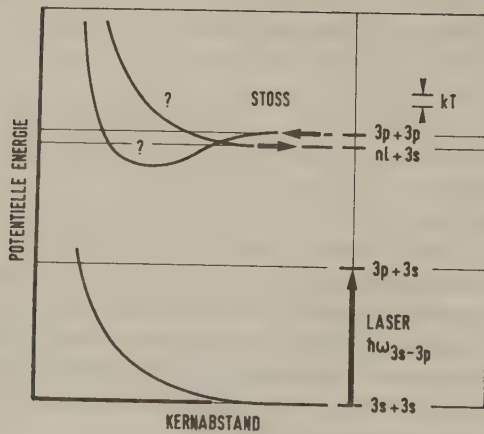


Abb. 3.5: Schematisches Potentialkurvenbild für den 'Energy Pooling' Stoßprozeß.

seit dieser Zeit im Rahmen der Untersuchung an resonant gepumpten Metaldämpfen hoher Dichte (siehe z.B. /LMc 80/) das Interesse vieler Arbeitsgruppen auf sich gezogen /KMo 82, HGa 83, ABM 83/ und Referenzen dort).

Basierend auf einfachen Modellvorstellungen des Stoßprozesses (schematisches Potentialkurvenbild siehe Abb. 3.5, vergleiche aber auch Abb. 3.1) wird dabei in erster Linie die Bildung von Na in den Produktzuständen 5s, 4d (auch 4f) erwartet. In diesem Fall stimmt beim Stoß die potentielle Energie der Teilchen im einlaufenden Kanal (asymptotisch mit der Konfiguration 3p-3p korrespondierend) etwa innerhalb des 1.5-fachen Wertes der thermischen Energie kT mit der potentiellen Energie der Produktteilchen im auslaufenden Kanal (3s-5s, 3s-4d Konfiguration bei großem Kernabstand) überein (Energieabstände in Einheiten von kT , siehe Tab. 3.2). Der elektronische Energietransfer kann damit also nahezu resonant ablaufen. Für mögliche andere Produktzustände, wie z.B. 4p, 5p, 6s, etc., bei welchen die Energiediskrepanz zwischen einlaufendem und auslaufendem Kanal sehr viel größer als die thermische Energie ist, ist der Prozeß nicht resonant und damit weitaus unwahrscheinlicher.

Tab. 3.2 zeigt experimentell bestimmte Wirkungsquerschnitte verschiedener Autoren (vor allem für die Bildung von 5s und 4d). Dabei kam es in der Vergangenheit, bedingt durch unvollständige Behandlung des 'Radiation Trapping' Problems, ungenügende Bestimmung der Dichte der angeregten 3p Atome und Nichtbeachtung möglicher, parallel ablaufender Ionisationsprozesse, zu großen Streuungen innerhalb der einzelnen Ergebnisse (über 4 Größenordnungen, siehe /KLe 82, KSc 81, AAK 81/). Erst in jüngster Zeit gibt es eine Reihe von verlässlichen Messungen /HGa 83, ABM 83/, die diese systematischen Fehler auszuschließen versuchen. Die darin gewonnenen Werte für 5s und 4d sowie deren Verhältnisse stimmen innerhalb der angegebenen Fehlergrenzen gut miteinander überein. Dies trifft auch innerhalb einer Größenordnung auf den einzigen

Tab. 3.2: Vergleich der experimentellen und theoretischen Werte für die Ratenkonstante k_{n1} und den daraus bestimmten Stoßquerschnitten σ_{n1} ; hauptsächlich für $n1 = 5s, 4d$.

Zustand $n1$	T (K)	k_{n1}^a (cm^3/s)	σ_{n1}^a (cm^2)	Referenz	$(E_{n1} - 2E_{3p})/kT$ bei $T = 700 \text{ K}$
Experiment					
4d					1.27
	498		10^{-16}	/AAK 81/	
	675	1×10^{-12}	9×10^{-18}	/KSc 81/	
	505	4.5×10^{-15}	4.7×10^{-20}	/KLe 82/	
			10^{-14}	/GPW 82/	
	597	2.46×10^{-10}	$2.3 \times 10^{-15} \pm 35\%$	/HGa 83/ ^b	
	488	3×10^{-10}	$3.2 \times 10^{-15} \pm 35\%$	/ABM 83/ ^b	
5s					-1.5
	505	7×10^{-15}	7.3×10^{-20}	/KLe 82/	
	597	1.63×10^{-10}	$1.6 \times 10^{-15} \pm 35\%$	/HGa 83/ ^b	
	488	1.9×10^{-10}	$2 \times 10^{-15} \pm 35\%$	/ABM 83/ ^b	
4f					1.3
5p					2.3
6s					5
	597		6×10^{-17}	/HGa 83/ ^{c, b}	
5d					6.4
	597		1×10^{-17}	/HGa 83/ ^{c, b}	
4p					-7.5
Theorie					
4d	700		8.6×10^{-16}	/Kow 79/	

^a $k_{n1} = \sigma_{n1} \bar{v}$ mit $\bar{v} = (8kT/\pi\mu)^{1/2}$; k : Boltzmannkonstante

T : Temperatur

μ : reduzierte Masse

^b zuverlässige Daten; siehe Text

^c Abschätzungen

theoretisch bestimmten Wert für den Querschnitt von 4d zu /Kow 78/. Diese Berechnung stützt sich, unter Zugrundelegung von langreichweitiger Dipol-Dipol Wechselwirkung während des Stoßes, auf Potentialkurvenverläufe und -kreuzungen für große Kernabstände ($R > 15 \text{ \AA}$). Da mögliche Übergänge zwischen den Potentialkurven bei kürzeren Kernabständen nicht ausgeschlossen werden können, handelt es sich um eine mehr oder weniger grobe Abschätzung.

Diese Messungen und Berechnungen zeigen also, daß im Falle $E_{n1} - 2E_{3p} \approx kT$, die beobachteten Querschnitte für 'Energy Pooling'-Stöße, genauso wie die Querschnitte anderer, durch resonante langreichweitige Dipol-Dipol Wechselwirkung bestimmte Prozesse im Natrium (z.B. Feinstrukturaustauschstöße /PKr 68/ oder Resonanzstoßverbreiterung /Hue 82/), in der Nähe des gaskinetischen Wirkungsquerschnittes für den Stoß zweier Na(3p) Atome ($\approx 10^{-14} \text{ cm}^2$) liegen.

Wegen der guten Übereinstimmung der Messungen von Allgrini et al. /ABM 83/ und von Huennekens und Gallagher /HGa 83/ wird für die weitere Verwendung in dieser Arbeit der Mittelwert aus beiden Ergebnissen benutzt. So ergibt sich:

$$\begin{aligned} k_{5s} &= 1.76 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}, & \sigma_{5s} &= 1.8 \times 10^{-15} \text{ cm}^2 \\ k_{4d} &= 2.73 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}, & \sigma_{4d} &= 2.75 \times 10^{-15} \text{ cm}^2 \end{aligned} \quad (3.53)$$

Wirkungsquerschnitte für die Bildung anderer, höher angeregter Zustände sind - falls gemessen -, so doch wegen der oben genannten Einschränkungen bei den Experimenten mit Vorsicht zu gebrauchen. Aus den verlässlichen Daten für 5s und 4d jedoch kann man für Zustände n1 oberhalb dieser Zustände die Ratenkonstanten über eine einfache Aktivierungsenergieüberlegung (für diese n1 ist der Prozeß (3.52) endotherm):

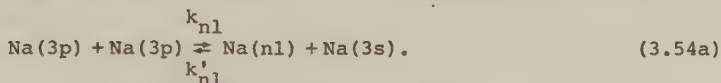
$$k_{n1}/k_{4d} \sim \exp(E_{n1} - E_{4d}/kT) \quad (3.54)$$

abzuschätzen versuchen. Für 6s und 5d sind darüber bestimmte Querschnitte in Tab. 3.2 aufgeführt. Interessant im Hinblick auf das durchgeführte Experiment ist auch der Wirkungsquerschnitt für die Bildung von 4p. Er wurde experimentell $\sigma_{4p} = 3.2 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$ bestimmt. Trotz der Unzulänglichkeiten in diesem Experiment (Überschätzung der Dichte der angeregten Atome und Vernachlässigung der Bevölkerung des 4p Zustandes durch Strahlungskaskaden von höheren Zuständen - beide Effekte beeinflussen den Querschnitt in gegenläufiger Richtung -), kann er doch als Richtwert angesehen werden und zeigt, daß die Bevölkerung dieses Zustandes durch 'Energy Pooling' gegenüber der von 5s oder 4d zu vernachlässigen ist. Dies wird auch einfachen theoretischen Überlegungen zufolge, wonach der Querschnitt für Energietransferprozesse dieser Art stark vom elektrischen Dipolmatrixelement abhängt, welches den Zustand 3p mit dem höher angeregten Zustand n1 verbindet, erwartet: Dieses Matrixelement ist für die Anregung von np Zuständen Null (dipolverbotener Übergang). Das gleiche gilt auch grundsätzlich für andere Zustände, wie z.B. den nur 40 cm^{-1} oberhalb von 4d gelegenen 4f Zustand. Da alle experimentellen Methoden zur Bestimmung des 'Energy Pooling'-Querschnittes auf Messungen der sichtbaren Fluoreszenz aufbauen, der Übergang 4f - 3d aber im Infraroten bei etwa $1.8 \mu\text{m}$ liegt, ist auch dieser Querschnitt unbekannt. Als anderer möglicher Populationsmechanismus von 4f muß aber, wenn man von einer durch den Prozeß (3.52) vernachlässigbaren Anregung ausgeht, der fast resonante Energietransferprozeß zwischen 4d (durch 'Energy Pooling' effektiv bevölkert) und 4f in Form von 1-Austauschstößen angesehen werden. Dieser Prozeß nimmt gerade bei hohen Drucken auch Einfluß auf die Bestimmung des 'Energy Pooling'-Querschnittes von 4d /HGA 83/.

Basierend auf diesen Ergebnissen kann also der Energietransferprozeß (3.52) als selektiver Bevölkerungsmechanismus vor allem von 5s, 4d angesehen werden, der eine Besetzungsinversion zwischen diesen und den darunterliegenden Niveaus, die durch den 'Pooling'-Prozeß kaum oder gar nicht bevölkert

werden, möglich werden läßt. Denkbar sind also grundsätzlich Populationsinversionen zwischen 5s und 4p, 4d und 4p. Darauf soll in Kap. 3.4 näher eingegangen werden.

Bei den in den experimentellen Studien verwendeten hohen Na Dichten muß jedoch neben dem 'Energy Pooling'-Stoßprozeß auch der ihm entsprechende Rückprozeß betrachtet werden:



Die Ratenkonstante für diesen in entgegengesetzter Richtung ablaufenden Prozeß sei k'_{nl} . Sie ist mit der 'Energy Pooling'-Ratenkonstante k_{nl} über das 'Prinzip des Detaillierten Gleichgewichts' fest verknüpft:

$$k'_{nl} = k_{nl} (g_{3p} + 3p/g_{nl} + 3s) \exp(-(2E_{3p} - E_{nl})/kT). \quad (3.54b)$$

Wird angenommen, daß es sich bei den darin enthaltenen statistischen Gewichten um die der im Stoß gebildeten möglichen Potentialkurven des Na_2 Moleküls handelt (da weder Information über den Verlauf der beteiligten Potentialkurven, noch über die für den Stoßprozeß relevanten Potentialkurvenkreuzungen existieren, ist diese Annahme als Grundlage für eine grobe Abschätzung dieser Ratenkonstanten zu rechtfertigen), so ergibt sich für die Ratenkonstante des Rückprozesses:

$$k'_{5s} = 3.53 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s} \quad (3.54c)$$

$$k'_{4d} = 1.16 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$$

(diese Werte lassen sich gut mit der einzigen experimentell bestimmten Ratenkonstante für solche Prozesse im Cs verglei-

chen, siehe Happer et al. /YTH 78/ mit einer abgeschätzten Ratenkonstante von $1,5 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$).

Für das Verhältnis der Raten für Hin- (R) und Rückprozeß (R') gilt allgemein mit $R' = k'n_{3s}n_{nl}$ und $n_{nl} = R \cdot \tau$:

$$R'/R = k'\tau n_{3s}. \quad (3.54d)$$

Dabei sind n_{3s} , n_{nl} die Teilchendichten in den Zuständen 3s und nl und τ ist im stationären Zustand die Lebensdauer des Zustandes nl. Man beachte, daß dieses Verhältnis im wesentlichen von der Dichte der Grundzustandsatome abhängt und proportional dieser ansteigt. Bei großen Na Dichten wird also der Rückprozeß dominieren.

Die Raten für Hin- und Rückprozeß sind dann gleich, wenn im Falle von $nl = 5s$ eine Grundzustandsdichte von $n_{3s} \approx 3.4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ und im Fall von $nl = 4d$ eine von $n_{3s} \approx 1.6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ erreicht wird. Der Rückprozeß darf also bei solchen Na Dichten nicht mehr vernachlässigt werden (im Gegensatz zu den Experimenten zur Bestimmung der 'Energy Pooling'-Ratenkonstante, die ausnahmslos bei sehr viel niedrigeren Na Dichten durchgeführt werden /HGa 83, ABM 83/) und kann gerade bei höheren Na Dichten dem selektiven 'Energy Pooling'-Pumpprozeß entgegenarbeiten .

● 3.2.2 Direkte Zweiphotonenanregung im Atom ●

Als ein weiterer selektiver Anregungsprozeß soll im folgenden die Zweiphotonenabsorption /GMA 31, BKh 65, Gol 69/ vorgestellt werden. Dabei ist in den in dieser Arbeit vorgenommenen Untersuchungen vor allem der Übergang $3s - 5s$ gemäß



$$\text{mit } 2\hbar\omega_L = \hbar\omega_{3s-5s}$$

von praktischem Interesse, da er

- (i) mit seiner benötigten Pumpwellenlänge von 602.23 nm sehr gut mit einem Rhodamin 6G betriebenen Dyelaser induziert werden kann, und
- (ii) durch den direkten optischen Pumpmechanismus als Vergleich für andere Populationsprozesse von $5s$ (z.B. durch Stöße) herangezogen werden kann.

Das atomare System soll zunächst bei der Bestimmung der Übergangsrate bei einem Zweiphotonenprozeß durch einen Grundzustand $|i\rangle$, einen oberen Zustand $|f\rangle$ und mehrere Zwischenzustände $|r\rangle$ beschrieben werden (siehe Abb. 3.6). Zwischen den vorerst entarteten Zuständen $|i\rangle$ und $|r\rangle$ und zwischen $|r\rangle$ und $|f\rangle$ seien elektrische Dipolübergänge erlaubt. Die entsprechenden Übergangswahrscheinlichkeiten für spontane Emission seien A_{ri} und A_{fr} . Mit diesem atomaren System wechselwirke ein Strahlungsfeld mit der spektralen Intensität $I(\omega)$, dessen Spektralbreite groß gegen die typischen atomaren Linienbreiten sein soll. Beide für den Zweiphotonenübergang benötigten Photonen mit der Frequenz ω sollen aus ein und demselben, sich nur in einer Richtung ausbreitenden Strahl absorbiert werden (im Gegensatz zu den in der dopplerfreien Zweiphotonenspektrosko-

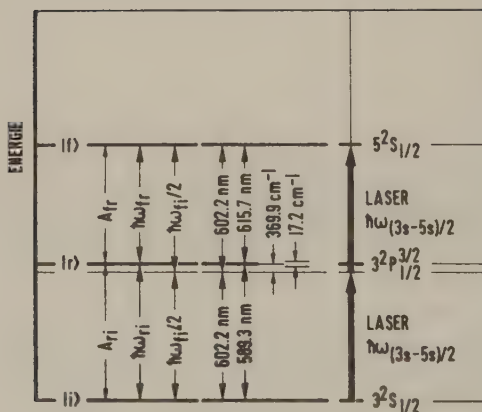


Abb. 3.6: Energieniveauschema für die Zweiphotonenabsorption

pie gebräuchlichen beiden gegenläufigen Strahlen). Die Frequenz ω der Strahlung sei nicht resonant mit den beiden dipolerlaubten atomaren Übergangsfrequenzen, die Summe beider Frequenzen aber sei resonant oder nahezu resonant mit der Differenzfrequenz zwischen oberem und unterem Zustand, die gleiche Parität besitzen. Der Übergang von $|i\rangle$ nach $|f\rangle$ ist also in 1. Ordnung Störungsrechnung als Dipolübergang verboten.

Eine Störungsrechnung zweiter Ordnung /BKh 65/ ergibt jedoch die Möglichkeit eines Übergangs zwischen $|i\rangle$ und $|f\rangle$ mit einer Rate (siehe /vDi 78, NSc 78/ für breitbandige Anregung):

$$\Gamma_{i \rightarrow f} = (4\pi^3/c^2\hbar^4) \int d\omega d\omega' I(\omega) I(\omega') \delta(\omega + \omega' - \omega_{fi}) \\ \times \left| \sum_r \langle f | \vec{e} \vec{D} | r \rangle \langle r | \vec{e} \vec{D} | i \rangle ((\omega - \omega_{ri})^{-1} + (\omega' - \omega_{ri})^{-1}) \right|^2 \quad (3.56)$$

wobei: $\vec{D}$: elektrisches Dipolmoment des Atoms
 $\vec{e}$: Polarisation des elektrischen Feldes
 c : Lichtgeschwindigkeit
 $\hbar$: Plank'sche Konstante.

Für den konkreten Fall des $3^2S_{1/2} - 5^2S_{1/2}$ Übergangs im Natrium muß dabei die Summation über die Zwischenzustände $|r\rangle$ nur über das 3P Dublett ausgeführt werden. Bei einem eingestrahlten Laser mit einer Frequenz von etwa $(1/2)\omega_{fi}$ weisen diese Zustände die bei weitem kleinste Verstimmung $(1/2)\omega_{fi} - \omega_{ri} = (1/2)(\omega_{fr} - \omega_{ri})$ auf. Diese kann für beide Zustände des Dubletts als gleich angenommen werden, da der Frequenzabstand innerhalb des Dubletts klein gegenüber dieser Verstimmung ist (siehe Abb. 3.6). Wegen der Entartung der Zustände muß nun über die Unterzustände des Anfangszustandes $|i\rangle$ (Entartung: $2J_i+1$) gemittelt werden. Somit erhält man aus (3.56):

$$\begin{aligned} \Gamma_{i-f} &= (64\pi^3/c^2\hbar^4) (\omega_{fr} - \omega_{ri})^{-2} (2J_i + 1)^{-1} \\ &\times \sum_{rr'} \langle f | \vec{e} \vec{D} | r \rangle \langle r | \vec{e} \vec{D} | i \rangle \langle i | \vec{e}^* \vec{D} | r' \rangle \langle r' | \vec{e}^* \vec{D} | t \rangle \\ &\times \int d\omega I(\omega) I(\omega_{fi} - \omega) \end{aligned} \quad (3.57)$$

Da in unseren Untersuchungen die Anregung durch einen linear polarisierten Laser erfolgt, sind mit der Wahl der Quantisierungsachse parallel zur Polarisationsachse nur $\Delta m = 0$ Übergänge erlaubt (also: $m_i = 1/2 \rightarrow m_r = 1/2 \rightarrow m_f = 1/2$ und $m_i = -1/2 \rightarrow m_r = -1/2 \rightarrow m_f = -1/2$). Einfach wird der Ausdruck, wenn man ihn durch die Übergangswahrscheinlichkeiten A_{ri} und A_{fr} (summiert über die beiden 3^2P Zustände) ausdrückt.

Nach einiger Racah Algebra ergibt sich dann (siehe /vDi 78/):

$$\begin{aligned} \Gamma_{3s-5s} &= (12\pi^3 c^4 / \hbar^2 \omega_{fr}^3 \omega_{ri}^3) (\omega_{fr} - \omega_{ri})^{-2} A_{5s-3p} A_{3p-3s} \\ &\times \int d\omega I(\omega) I(\omega_{fi} - \omega) \end{aligned} \quad (3.61)$$

Bei dem die Linienform des Zweiphotonenübergangs beschreibenden Integral

$$\int d\omega I(\omega) I(\omega_{fi} - \omega) \stackrel{!}{=} W_w^2 \quad (3.62)$$

handelt es sich um eine Faltung des Laserspektrums mit sich selbst. Ausgehend von einem Gauß'schen Laserlinienprofil $I(\omega)$ mit der Linienbreite $\delta\omega_L$

$$I(\omega) = (J_O / \delta\omega_L) (4 \ln 2 / \pi)^{1/2} \exp(-\ln 2 ((\omega - \omega_{fi}) / \delta\omega_L)^2) \quad (3.63)$$

(wobei J_O : Intensität in der Linienmitte), ist dann

$$W_w^2 = (J_O^2 / \delta\omega_L) (2 \ln 2 / \pi)^{1/2} \exp(-\ln 2 ((\omega - \omega_{fi}) / \sqrt{2} \delta\omega_L)^2) \quad (3.64)$$

und in der Linienmitte

$$W_{\omega_{fi}}^2 = (J_O^2 / \delta \omega_L) (2 \ln 2 / \pi)^{1/2}. \quad (3.65)$$

Somit erhält man also (mit $A_{5s-3p} = 7.23 \times 10^6 s^{-1}$, $A_{3p-3s} = 6.3 \times 10^7 s^{-1}$, $\lambda_{fr} = 615.7 \text{ nm}$, $\lambda_{ri} = 589.3 \text{ nm}$) für einen breitbandigen, resonant ($1/2 \lambda_{fi} = 602.23 \text{ nm}$) auf dem Zweiphotonenübergang $3s-5s$ eingestrahlichten Laser die Populationsrate des Zustandes $5s$:

$$\begin{aligned} \dot{n}_{5s} &= n_{3s} \Gamma_{3s-5s} \\ &= 4.84 \times 10^5 (n_{3s} / \text{cm}^{-3}) (J_O / (\text{W/cm}^2))^2 / (\delta \omega_L / s^{-1}) \\ &\quad \text{cm}^{-3} s^{-1} \end{aligned} \quad (3.66)$$

Bei der üblicherweise verwendeten Na Teilchendichte $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, eingestrahlichten Laserintensitäten $J_O = 10^3$ bis 10^5 W/cm^2 und einer Laserbandbreite $\delta \omega_L = 2\pi \times 35 \text{ GHz}$ beträgt diese Rate: $\dot{n}_{5s} = 2.2 \times 10^{16} - 2.2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3} s^{-1}$.

Die Abschätzung gilt natürlich nur unter der Annahme eines gegenüber dem atomaren Linienprofil breiten Laserlinienprofils. Müssen Linienverbreiterungseffekte mit berücksichtigt werden, die Linienbreiten in der Größenordnung der Laserlinienbreite liefern, so muß in (3.56) die Deltafunktion durch das entsprechende aktuelle Linienprofil ersetzt werden. Auch der Zweiphotonenübergang ist stoß- und dopplerverbreitert. Im Falle eines reinen Na Dampfes kann es sich dabei um die Verbreiterung der Linie durch Stöße des angeregten Atoms mit Na Atomen - hauptsächlich im Grundzustand - handeln (der sogenannten Selbst- oder Resonanzverbreiterung). Liegt ein Edelgas-Dampfgemisch vor, so bewirken Stöße mit den Fremdgasatomen die Verbreiterung der Linie. Die Größe der Verbreiterung wird, wie in Kap. 3.1.2 beschrieben, durch eine Ratenkonstante k_{Br} bestimmt. Für den Übergang $3s-5s$ beträgt sie für Selbstverbreiterung /Woe 79/

$$k_{\text{Br}}^{\text{selbst}} = 5.1 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$$

und für Verbreiterung durch Edelgase /BCG 77/

$$k_{\text{Br}}^{\text{Edelgas}} = (1 - 3) \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$$

Die Linienbreite des jeweiligen Lorentzprofils wird dann durch

$$\delta\omega_c = nk_{\text{Br}} \quad (3.67)$$

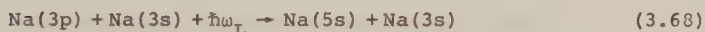
gegeben (wobei n im Falle der Selbstverbreiterung die Na Grundzustandsdichte und im Falle der Verbreiterung durch Edelgase die Dichte dieser Störteilchen ist). Der Wert von k_{Br} bei Selbstverbreiterung ist im Vergleich zu der Situation beim Einphotonübergang $3s - 3p$, wo bei den die Verbreiterung bewirkenden Stößen der Fall der resonanten Dipol-Dipol Wechselwirkung vorliegt, wesentlich kleiner (vgl. Tab. 3.1), da es sich hier nur um eine nichtresonante Van der Waals Wechselwirkung zwischen angeregten Teilchen und Grundzustandsteilchen handelt (zwischen $|i\rangle$ und $|f\rangle$ existiert kein elektrisches Dipolelement 1. Ordnung, es kann also nicht zu einer resonanten Dipol-Dipol Wechselwirkung kommen). Damit kann man für den in dieser Arbeit benutzten Druckbereich (0.1 - 10 mbar Na) die Selbstverbreiterung gegenüber dem Dopplereffekt vernachlässigen. Da die Dopplerbreite etwa einige GHz beträgt, ist also die Annahme eines gegenüber der atomaren Linie sehr viel breiteren Laserprofils (Breite meist um 35 GHz) gerechtfertigt. Dies ist nicht mehr erfüllt für hohe Edelgas-Fremdgasdrucke (im Bereich einiger Hundert mbar). Dann dominiert die Stoßverbreiterung, und die atomare Linienbreite kommt in die Größe der Laserlinienbreite.

● 3.2.3 Stoßinduzierte Zweistufenanregung im Atom ●

Alternativ zu der direkten Zweiphotonenanregung von 3s nach 5s (siehe voriges Kapitel) existiert die Möglichkeit, daß die beiden Photonen mit der Frequenz $\omega_L = (1/2)\omega_{fi}$ ($\lambda_L = 602.23$ nm, siehe Abb. 3.6) nacheinander in den jeweiligen Linienflügeln der 3s - 3p und 3p - 5s Übergänge absorbiert werden, die unter den in den Untersuchungen vorherrschenden Bedingungen stoßverbreitert (meist selbstverbreitert) sind - also in einer Art stoßinduziertem Zweistufenprozeß:



gefolgt von



mit $\hbar\omega_L = (1/2) \hbar\omega_{3s-5s}$.

Dieser Prozeß läßt sich, was das Endergebnis - nämlich die Bildung von Atomen im 5s Zustand - anbelangt, nicht von dem direkten Zweiphotonenprozeß unterscheiden. Es kann jedoch grob abgeschätzt werden, ob dieser Zweistufenprozeß bei der Zweiphotonenabsorption eine Rolle spielt.

Der erste Schritt, die Absorption eines Photons mit der Wellenlänge λ_L wird auf dem roten Flügel der selbstverbreiterten und durch Lorentzprofile zu beschreibenden D-Linien vorgenommen. Der Absorptionskoeffizient für die etwa 13 nm vom Linienzentrum entfernt eingestrahlte Wellenlänge beträgt für eine typisch im Experiment gebrauchte Teilchendichte $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ nach Gl. (3.31): $k_{3s-3p}(602.2 \text{ nm}) \approx 1.4 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ (wobei in (3.31) benutzt werden: $A_{3p-3s} = 6.3 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$, $k_{Br}^{D_2} = 4.67 \times 10^{-7} \text{ cm}^3/\text{s}$, $k_{Br}^{D_1} = 3.07 \times 10^{-7} \text{ cm}^3/\text{s}$). Mit dem Zusammenhang

$$\hbar = k_V J / h\nu \quad (3.69)$$

zwischen Bevölkerungsrate $\dot{n}$ und Absorptionskoeffizient k_v (J : Intensität des eingestrahnten Lasers in W/cm^2 , $h\nu$: Energie eines Laserphotons mit der Frequenz ν , n : Dichte der Teilchen im angeregten Zustand), folgt dann bei einer typisch benutzten Laserintensität $J = 10^5 \text{ W/cm}^2$ für die Bildungsrate von $3p$: $\dot{n}_{3p} \approx 4 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$. Wie sich in den experimentellen Untersuchungen zeigt (siehe Kap. 4), werden üblicherweise Zeitspannen von ungefähr 100 ns nach Einsetzen des Pumpprozesses gebraucht, um eine Besetzungsinversion zwischen oberem Zustand $5s$ und darunterliegenden Zuständen aufzubauen. Deshalb soll die Populationsrate des $5s$ Zustandes auch nur nach Ablauf dieser Zeit berechnet werden. Bei der gewählten einfachen Betrachtungsweise beträgt nach dieser Zeit die Dichte der $3p$ Atome: $n_{3p} \approx 4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$.

Der anschließende zweite Anregungsschritt ist die Absorption eines Photons mit der gleichen Wellenlänge λ_L auf dem blauen Flügel der ebenfalls stoßverbreiterten $3p-5s$ Linie. Wegen der nun kleineren Rate für spontane Emission für diesen Übergang ($A_{5s-3p_{3/2}} = 4.82 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$, $A_{5s-3p_{1/2}} = 2.41 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ /WSM 69/) ergibt sich mit den vorgenannten Dichten für $3s$ und $3p$ und der Annahme, daß die Selbstverbreiterungskonstante für diesen Übergang etwa gleich groß ist wie die des $3s-3p$ Übergangs (in beiden Fällen wird die Wechselwirkung beim Stoß durch die langreichweitige Dipol-Dipol Wechselwirkung bestimmt, da beide Übergänge als elektrische Dipolübergänge erlaubt sind; diese Annahme wird dadurch gestützt, daß die Ratenkonstanten bei der Verbreiterung durch Edelgase für beide Übergänge in der gleichen Größenordnung liegen /GCG 81/), ein Absorptionskoeffizient $k_{3p-5s}(602.2 \text{ nm}) \approx 2.8 \times 10^{-7} \text{ cm}^{-1}$. Daraus folgt mit Gl. (3.66) und $J = 10^5 \text{ W/cm}^2$ für die Pumprate von $5s$: $\dot{n}_{5s} = 8.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$. Sie ist damit gegenüber der entsprechenden Rate für den direkten Zweiphotonenpumpprozeß ($\dot{n}_{5s} = 2.2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$) sicher zu vernachlässigen.

Dieses Ergebnis legt dennoch den Gedanken nahe, den Laser auf einem der beiden Übergänge $3p-5s$ oder $3s-3p$ resonant einzustrahlen, um dadurch, daß dann nur noch ein Schritt über den stoßverbreiterten Flügel des jeweils anderen Übergangs ablaufen muß, die Populationsrate von $5s$ zu erhöhen.

Im folgenden sollen also die beiden stoßinduziert ablaufenden Zweistufenprozesse

$$Na(3s) + \hbar\omega_L \rightarrow Na(3p)$$

$$Na(3p) + Na(3s) + \hbar\omega_L \rightarrow Na(5s) + Na(3s) \quad (3.70)$$

$$\text{mit } \hbar\omega_L = \hbar\omega_{3s-3p_{1/2}} \text{ oder } \hbar\omega_{3s-3p_{3/2}}.$$

und

$$Na(3s) + Na(3s) + \hbar\omega_L \rightarrow Na(3p) + Na(3s)$$

$$Na(3p) + \hbar\omega_L \rightarrow Na(5s) \quad (3.71)$$

$$\text{mit } \hbar\omega_L = \hbar\omega_{3p_{1/2}-5s} \text{ oder } \hbar\omega_{3p_{3/2}-5s}$$

behandelt werden.

Der erste Prozeß (3.70) - also die resonante Anregung auf den Na D-Linien und damit Erzeugung von hohen $3p$ Teilchendichten im ersten Schritt, gefolgt von der Anregung von Teilchen im $5s$ Zustand durch die Absorption eines zweiten Photons auf dem blauen Flügel ($\Delta\lambda \approx 26.4$ nm) des stoßverbreiterten $3p-5s$ Übergangs im zweiten Schritt (siehe Abb. 3.7) - steht dabei in Konkurrenz zum 'Energy Pooling'-Pumpprozess (3.52) und kann prinzipiell nicht von ihm unterschieden werden. Die Querschnitte für diese beiden Prozesse werden aber erst - Berechnung Kowalczyks /Kow 80/ zufolge - bei Laserintensitäten verbleichbar, die größer als 10^8 W/cm² sind. Für eine Intensität von $J = 10^5$ W/cm² und eine Dampftemperatur von etwa

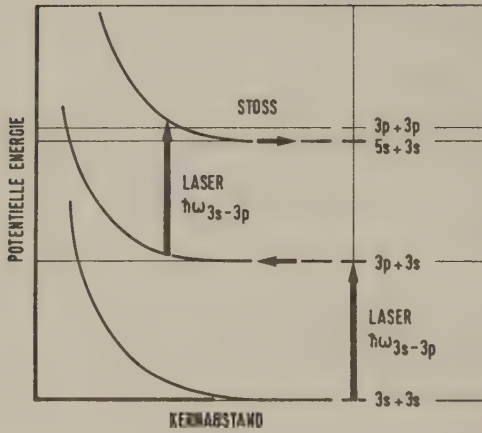


Abb. 3.7: Schema für den stoßinduzierten Zweistufenanregungsprozeß $3s - 5s$ mit einem resonant auf dem $3s - 3p$ Übergang eingestrahlten Laser.

700 K kann man aus diesen Berechnungen durch Extrapolation einen Wirkungsquerschnitt von etwa $5 \times 10^{-22} \text{ cm}^2$ erwarten. Der Prozeß (3.70) ist also unter den experimentellen Bedingungen in dieser Arbeit gegenüber dem 'Energy Pooling'-Stoßprozeß mit einem Wirkungsquerschnitt σ_{5s} von einigen 10^{-15} cm^2 als möglicher Mechanismus für die Anregung von 5s zu vernachlässigen. Dem 'Energy Pooling'-Querschnitt σ_{5s} entspricht unter der Annahme, daß durch mehr oder weniger resonantes Pumpen des Dampfes auf den D-Linien (siehe Kap. 3.1) bei einer typischen Grundzustandsdichte von $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ etwa eine angeregte Teilchendichte $n_{3p} \approx 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ erzeugt wird, eine Populationsrate $\dot{n}_{5s} = n_{3p} \sigma_{5s} \bar{v} \approx 1.3 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ (mit $\sigma_{5s} = 1.8 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$, $\bar{v} \approx 10^5 \text{ cm/s}$).

Bei dem zweiten möglichen, stoßinduziert ablaufenden Zweistufenprozeß (3.71) handelt es sich um die Anregung von 3p Atomen durch Absorption eines resonant auf dem Übergang 3p - 5s eingestrahlichten Lasers auf dem roten Flügel des selbstverbreiterten 3s - 3p Übergangs, gefolgt von der resonanten Absorption eines weiteren Photons auf dem Übergang 3p - 5s (siehe Abb. 3.8). Hinweise auf diese Art der Zweiphotonenabsorption in Gegenwart von Stößen findet man erstmals in einer theoretischen Arbeit von Nienhuis und Schuller /NSc 78/ sowie in experimentellen Untersuchungen von van Dijk und von Granier et al. /vDi 78, GCG 81/. Ähnlich wie im Fall des stoßinduzierten Konkurrenzprozesses zur direkten Zweiphotonenabsorption (siehe am Anfang des Kapitels), kann auch hier die Populationsrate von 5s abgeschätzt werden. Gegenüber jener Art der Anregung bei einer Pumpwellenlänge von $\lambda = 602.2 \text{ nm}$ unterscheidet sich der jetzt betrachtete Prozeß zunächst einmal in der Anregungswellenlänge. Mit 615.4 oder 616 nm (siehe Abb. 3.1) ist sie im ersten Schritt des Zweistufenprozesses gegenüber dem Zentrum des selbstverbreiterten 3s - 3p Übergangs etwa $\Delta\lambda = 26.4 \text{ nm}$ verstimmt. Der Absorptionskoeffizient auf den Flügeln der D-Linien ist also für diese Wellenlänge: $k_{3s-3p}(615.7 \text{ nm}) \approx 3.2 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$. Dieser Wert führt mit (3.66) und den im Experiment üblichen Bedingungen ($J = 10^5 \text{ W/cm}^2$ und $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) zu einer Anre-

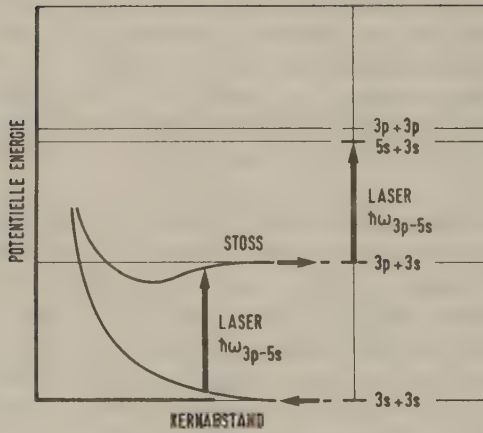


Abb. 3.8: Schema für den stoßinduzierten Zweistufenanregungsprozeß $3s-5s$ mit einem resonant auf dem $3p-5s$ Übergang eingestrahlten Laser.

gungsrate von $\dot{n}_{3p} \approx 10^{20} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$. Zusätzlich unterscheidet sich nun dieser Zweistufenprozeß darin, daß der zweite Anregungsschritt in diesem Fall resonant ablaufen soll. Da sich die Raten für Bildung von Atomen im 3p Zustand in beiden Fällen kaum unterscheiden, wird hier also direkt eine wesentlich höhere totale Anregungsrate für 5s erwartet. Geht man durch diesen resonanten zweiten Anregungsschritt davon aus, daß fast jedes im Linienflügel der D-Linien kreierte 3p Atom in den 5s Zustand gelangt, so kann man für die Populationsrate von 5s durch diese stoßinduzierte Zweistufenabsorption $\dot{n}_{5s} \approx \dot{n}_{3p} = 10^{20} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ abschätzen.

Dieser letzte Prozeß führt also von den drei diskutierten stoßinduzierten Zweiphotonenprozessen zu einer mit dem direkten Zweiphotonen- und dem 'Energy Pooling'-Pumpprozeß vergleichbaren Populationsrate für den Zustand 5s.

Ähnliche Zweiphotonenpumpprozesse sind analog auch für 4d, 3d, etc. möglich, sollen hier aber nicht betrachtet werden, da die entsprechenden Anregungswellenlängen nicht oder nur in den äußersten Emissionsbereich des in dieser Arbeit verwendeten R6G Dylasers fallen.

Am Rande sei angemerkt, daß es sich bei den hier als stoßinduziert bezeichneten Zweiphotonenprozessen um Beispiele der seit Mitte der 70er Jahre untersuchten, sogenannten laserinduzierten Stoßprozesse handelt (siehe z.B. /Her 80, DLG 80, Wei 80/). Die Anregung kann dabei durch Absorption in den jeweiligen Flügeln der stoßverbreiterten Linien (sogenannte optische Stöße, siehe /GHO 77/) und/oder durch direkte Anregung des jeweiligen Stoßpaares (sogenannte 'radiative collisions' /YLG 77/) beschrieben werden. Harris et al. demonstrierten als erste einen solchen laserinduzierten Energietransferprozeß in einem Strontium-Calcium Stoß /FGW 77/. Als wesentlicher Mechanismus kann dabei im ersten Schritt des Prozesses die Dipol-Dipol Wechselwirkung zwischen den Stoßpartnern angesehen werden. Diese langreichweitige Stoßwechselwirkung produziert einen quasimolekularen gemischten

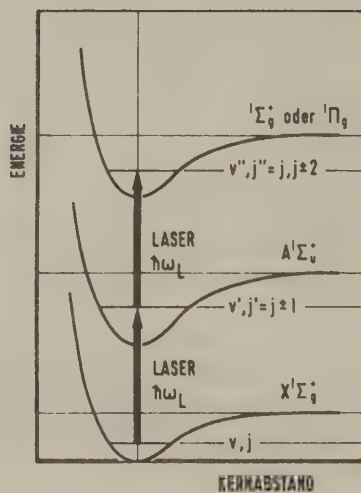


Abb. 3.9: Schema für die Zweiphotonenabsorption im Natrium-molekül über einen resonanten Zwischenzustand.

Zustand, der dann im zweiten Schritt im Laserfeld einen Dipolübergang ermöglicht.

3.2.4 Zweiphotonenabsorption im Molekül

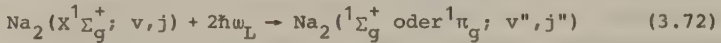
Ähnlich wie im Na Atom besteht auch im Na_2 Molekül durch Zweiphotonenabsorption die Möglichkeit der selektiven Bevölkerung höher angeregter Zustände. Im Molekül (siehe Abb. 3.1) handelt es sich dabei um Übergänge zwischen Schwingungs-Rotationszuständen des elektronischen Grundzustandes ($X^1\Sigma^+_g$) und Schwingungs-Rotationszuständen höherer elektronischer Zustände mit ebenfalls gerader Parität (zur Theorie von Zweiphotonenübergängen in homonuklearen Molekülen, siehe /BHo 76/).

Erste experimentelle Zweiphotonenübergänge dieser Art wurden von Woerdmann /Woe 76/ beobachtet und haben seitdem eine Reihe von Arbeiten nach sich gezogen, um die durch den Zweiphotonenprozeß erreichten, bis dahin unbekannten, oberen elektronischen Zustände spektroskopisch zu identifizieren (siehe z.B. Arbeiten von Schawlow et al. /CJM 81, CTJ 81/). Anfangs überraschten dabei die im Vergleich zu atomaren Zweiphotonenübergängen um einige Größenordnungen höheren Anregungswahrscheinlichkeiten, da unter gleichen experimentellen Bedingungen im Dampf weniger Moleküle existieren als Atome (Dampfdruckkurve Abb. 2.6), die noch dazu über viele Schwingungs-Rotationszustände im Grundzustand verteilt sind. Übergänge sind jedoch nur dann sehr stark, wenn sie durch zufällige Einphotonenresonanzen unterstützt werden /Woe 78/.

Grundsätzlich können im Na_2 Molekül bei Zweiphotonenübergängen mit sichtbarem Licht die beiden Zustände $A^1\Sigma^+_u$, $B^1\Pi_u$ als Zwischenzustände für die mit den Auswahlregeln für Zweiphotonenübergänge vom Grundzustand $X^1\Sigma^+_g$ aus erreichbaren höheren elektronischen Zustände $^1\Sigma^+_g$, $^1\Pi_g$ und $^1\Delta_g$ fungieren. Da aber nur dann mit großen Übergangswahrscheinlichkeiten für den Zweiphotonenprozeß gerechnet werden kann, wenn gemäß

den Auswahlregeln für elektrische Dipolstrahlung ein realer Übergang zwischen Zwischenzustand und unterem sowie oberem Zustand möglich ist, kommen für den hier benutzten Wellenlängenbereich des Rhodamin 6G Lasers allerdings nur Vibrations-Rotationsniveaus des $A^1\Sigma_u^+$ Zustandes als resonante Zwischenzustände in Frage. Damit reduzieren sich die möglichen oberen Niveaus auf $1\Sigma_g^+$ und $1\Pi_g$ Zustände, die dann im untersuchten Spektralbereich des DyeLasers etwa $33\,000\text{ cm}^{-1}$ über dem Grundzustand liegen sollten (siehe Abb. 3.1):

In dieser Arbeit werden also Zweiphotonenprozesse der Art



mit reellen Zwischenzuständen $Na_2(A^1\Sigma_u^+; v', j')$,
wobei $j' = j \pm 1$ und $j'' = j', j' \pm 2$

betrachtet (siehe auch Abb. 3.9), die als Pumpmechanismen zur Produktion von Besetzungsinversion zwischen diesen höheren Zuständen und darunterliegenden Zuständen dienen können.

● 3.3 Andere Prozesse in optisch gepumptem Na Dampf ●

Resonant auf den D-Linien eines Na Dampfes eingestrahlte Laser können eine Reihe interessanter Phänomene bewirken. Durch die dabei erzeugte hohe Dichte von angeregten $Na(3p)$ Atomen sind Prozesse möglich, die sich im wesentlichen in folgenden experimentellen Befunden äußern: Man beobachtet unter anderem Strahlung von höheren atomaren Zuständen ($nl > 3p$) /AAK 76/ sowie die Bildung von atomaren und molekularen Ionen /BLe 78/, unter Umständen bis hin zur totalen Ionisation des gesamten durchstrahlten Na Dampfes /LMc 76/.

Vor allem die von Lucatorto und McIlrath beobachtete, fast völlige Ionisation eines dichten ($n = 10^{16}\text{ cm}^{-3}$, Länge $l = 10\text{ cm}$) Na Metaldampfes nach der resonanten Anregung des

3s-3p Übergangs mit einem etwa 1 MW/cm^2 starken, $1 \mu\text{s}$ langen Laserpuls, zog eine Vielzahl von Experimenten nach sich, die alle die Klärung der Ionisationsmechanismen zum Ziel hatten (siehe z.B.: /BLe 78, JVa 79, RBS 80, Kle 80, CRB 81a, CRB 81b, GPW 82/). Die Ergebnisse dieser Untersuchungen lassen sich so deuten, daß im Prinzip 3 Klassen von Prozessen zum eigentlich komplexen Problem des Ionisationsverhaltens beitragen /LMc 80/:

- (i) Multiphotonenionisation (bei hohen Laserintensitäten)
- (ii) Ionisation durch atomare Stoßprozesse (Assoziative Ionisation, 'Energy Pooling'-Stöße oder laserinduzierte Stöße)
- (iii) Ionisation durch Elektron-Atom-Stoßprozesse (superelastische Stöße zwischen angeregten Atomen und Elektronen, Stoßionisation durch Elektronen)

Schwierig war und ist dabei die klare Identifizierung der dominierenden Prozesse und das Verständnis ihres Zusammenspiels bei dem Ionisationsphänomen. Als grobe Richtlinie kann ein von Measures et al. /Mea 77, MCA 81, MCS 81/ vorgeschlagenes, den zeitlichen Ionisationsablauf beschreibendes, sogenanntes LIBORS-Modell (LIBORS = 'Laser Ionization Based On Resonance Saturation') gelten. Nach diesem Modell lassen sich grundsätzlich 4 zeitlich aufeinanderfolgende Phasen der Ionisation unterscheiden:

1. Stufe: Unter der Annahme eines intensiven eingestrahlt Lasers: schnelle Sättigung des 3s-3p Übergangs
2. Stufe: Produktion von freien Elektronen durch die in (i) und (ii) aufgeführten Ionisationsmechanismen. Superelastische Stöße dieser sogenannten 'Seed'-Elektronen mit angeregten Atomen im 1. Resonanzzustand resultieren in einem 'Aufheizen' der Elektronen ('heiße' Elektronen)

3. Stufe: Bevölkering höherer Zustände durch inelastische Stöße dieser schnellen Elektronen mit angeregten Na(3p) Atomen und direkte Elektronenstoß-ionisation angeregter atomarer Spezies.
4. Stufe: Nach Erreichen einer kritischen Elektronendichte folgt ein lawinenartiges Ansteigen der Elektrendichte durch totale Stoßionisation aller Atome (sogenanntes 'Ionization Burnout').

Wegen der Komplexheit des betrachteten Systems werden in diesem Modell zeitlich-räumliche Effekte (Puls-, Strahlform des anregenden Lasers) sowohl beim Strahlungstransport des eingestrahlt Lasers als auch bei der Ionisation vernachlässigt, so daß sich quantitative Ergebnisse des Modells nur grob mit den experimentellen Beobachtungen des Zeitverhaltens der Ionisation vergleichen lassen. Hauptnachteil dieses Modells ist aber, daß einer der in (ii) aufgeführten Prozesse, nämlich der in Kap. 3.2.1 behandelte 'Energy Pooling'-Stoßprozeß als möglicher, den 'Seed'-Mechanismus mitbeeinflussender Prozeß völlig ignoriert wird. Dies liegt hauptsächlich an der in der Vergangenheit herrschenden Unsicherheit über die wahre Größe der Wirkungsquerschnitte für diesen Prozeß. Basierend auf verlässlichen Querschnittsdaten /ABM 83, HGa 83/ müssen jedoch auf diesem Prozeß aufbauende Folgeprozesse als mit dominierende anfängliche Bildungsmechanismen für freie Ionen und Elektronen angesehen werden. Die Beobachtung und Analyse des Energiespektrums der 'heißen' Elektronen zeigt eindeutig, daß diese Annahme richtig ist /GPW 82/. Eng mit dieser Problematik verknüpft war und ist die Frage, inwieweit die beobachtete Fluoreszenz höherer Zustände eine Folge dieses 'Energy Pooling'-Prozesses oder des oben angedeuteten Populationsmechanismus durch inelastische Stöße schneller, im Ionisationsablauf gebildeter Elektronen mit angeregten Atomen ist /KSS 80, CRB 81, AAK 81, KSc 81, AGL 82/.

Ähnlich wie in den Ionisationsstudien von Lucatorto und McIlrath /LMc 76/ oder Carré et al. /CRB 81b/, erfolgt die

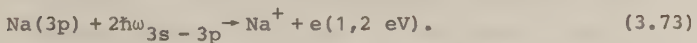
Anregung des Na Dampfes auch in dem in dieser Arbeit untersuchten System (Dichte: typisch 10^{16} cm^{-3}) mit einem etwa $1 \mu\text{s}$ langen blitzlampengepumpten Dylaserpuls mit einer maximalen Intensität von etwa 10^5 W/cm^2 . Einziger wichtiger Unterschied zu diesen Experimenten ist die Anregung auf den Flügeln der D-Linien, da eine Sättigung und damit ein Durchdringen des Mediums auf dem Linienzentrum mit der zur Verfügung stehenden Leistung des Lasers nicht zu bewerkstelligen ist (siehe Kap. 3.1.1.2). Dennoch werden auch in unserem Fall hohe Dichten angeregter Na(3p) Atome erzeugt, so daß auch die oben angedeuteten Ionisationsmechanismen entscheidend auf das Verhalten des angeregten Dampfes Einfluß nehmen. Damit kann auch der in Kap. 3.2.1 diskutierte 'Energy Pooling'-Pumpprozeß zur Erzeugung von Populationsinversion zwischen höheren angeregten Zuständen nicht mehr als allein ablaufender, unbeeinflusster Prozeß betrachtet werden (nicht zuletzt auch wegen der Tatsache, daß - wie oben erwähnt - dieser Prozeß selbst als indirekter Elektronenerzeugungsmechanismus wirken kann).

Um zu verstehen, in welcher Weise sich bei den durchgeführten Untersuchungen diese Ionisationsprozesse auf eine mögliche Besetzungsinversion und damit auf eine Lasertätigkeit zwischen diesen höheren Zuständen auswirken, sollen deshalb die relevanten Ionisationsprozesse genauer beschrieben werden.

Zunächst zu den Elektronen'seed'mechanismen:

Als wichtig müssen dabei nach dem Stand der derzeitigen Beobachtungen folgende Prozesse angesehen werden:

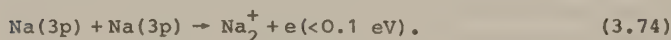
(i) Zweiphotonenionisation von Na(3p) Atomen:



Berechnungen Geltsman's /Gel 77/ ergeben für diesen Prozeß eine Elektronenbildungsrate $R_{\text{TI}} = 3.6 \times 10^{-12} (\text{J}/(\text{W/cm}^2))^{-2} \text{ s}^{-1}$.

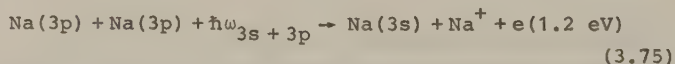
Bei einer angenommenen Dichte angeregter Atome von $n_{3p} \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (Grundzustandsdichte $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, Anregung auf den Flügeln der D-Linien) und einer in diesem Experiment üblichen Laserleistungsdichte $J = 10^5 \text{ W/cm}^2$, führt das zu einer Produktionsrate für freie Elektronen von $\dot{n}_e = n_{3p} R_{\text{TI}} \approx 3.6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$.

- (ii) Assoziative Ionisation: Beim Stoß zweier Na(3p) Teilchen ist energetisch die Bildung eines stabilen Moleküllions Na_2^+ und eines freien Elektrons möglich (siehe Abb. 3.1):



Die Ratenkonstante k_{AI} für diesen Prozeß schwankt experimentellen Ergebnissen verschiedener Untersuchungen /KSV 77, JVA 79, Kle 82, BBW 83/ zufolge zwischen 5×10^{-11} und $1.5 \times 10^{-13} \text{ cm}^3/\text{s}$. Diese Unterschiede kommen auch hier durch Schwierigkeiten bei der Bestimmung der Dichte der Na(3p) Atome zustande. Neueste Messungen von Huennekens und Gallagher /HGa 83b/, die die dabei auftretenden Probleme zu vermeiden versuchen, liefern einen Wert $k_{\text{AI}} = 5.6 \times 10^{-12} \text{ cm}^3/\text{s}$. Daraus ergibt sich mit $n_{3p} \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ für die Ionenbildungsrate $\dot{n}_e = k_{\text{AI}} n_{3p}^2 \approx 5.6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$.

- (iii) Die von Geltman /Gel 77/ vorgeschlagene laserinduzierte Penning Ionisation:

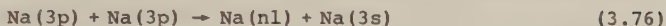


wobei der berechnete Wirkungsquerschnitt σ_{LPI} im Laserintensitätsbereich $J < 10^9 \text{ W/cm}$ etwa $6 \times 10^{-26} \times (J/(\text{W/cm}^2)) \text{ cm}^2$ beträgt (experimentell bestimmte Wirkungsquerschnittswerte von Weiner et al. /HCW 78/ für den Fall von Li stimmen innerhalb einer Größenordnung mit den theoretischen Werten Geltman's überein; experimentelle Beobachtungen im Na: siehe /PDW 80/).

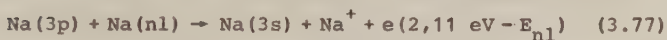
Damit wird eine Ionenbildungsrate $\dot{n}_e = \sigma_{\text{LPI}} \bar{v} n_{3p}^2 \approx 6 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ erwartet (mit $J = 10^5 \text{ W/cm}^2$,

$$n_{3p} \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}, \quad \bar{v} \approx 10^5 \text{ cm/s}.$$

(iv) Auf dem 'Energy Pooling'-Stoßprozeß

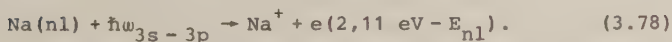


(wobei vor allem $nl = 4d, 5s$; siehe Kap. 3.2.1) aufbauende Ionisationsmechanismen wie: Die Ionisation dieser höheren $\text{Na}(nl)$ Atome durch Stöße mit $\text{Na}(3p)$ Atomen (Penning-Ionisation):



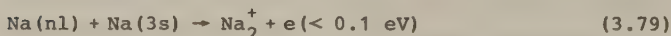
(wobei E_{nl} die Bindungsenergie des nl Elektrons ist). Die Bildungsrate von Elektronen durch diese beiden Stoßprozesse läßt sich über $\dot{n}_e = (n_{3p})^2 \sigma_{EP} \bar{v} \tau_{nl} (n_{3p} \sigma_{IC} \bar{v})$ abschätzen. Für $nl = 4d$ beträgt die Lebensdauer $\tau_{nl} = 53.5 \text{ ns}$ /Hea 61/ und der Wirkungsquerschnitt für 'Energy Pooling' $\sigma_{EP} = 2.75 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$. Der Querschnitt für Stoßionisation σ_{IC} ist im Falle von Na unbekannt. Gemessene Werte für entsprechende Prozesse im Rubidium (Stöße zwischen $5p$ und $nl = 9s, 8s, 7d, 6d$ /CSD 81, CBL 82/) lassen jedoch einen Wert von $\sigma_{IC} \approx 10^{-13} \text{ cm}^2$ erwarten. Bei der typischen Dichte angeregter Atome $n_{3p} \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ und einer bei den erzeugten Dampftemperaturen typischen mittleren Relativgeschwindigkeit von $\bar{v} \approx 10^5 \text{ cm/s}$ erhält man also: $\dot{n}_e \approx 1.4 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$.

Neben dieser Stoßionisation ist auch die Photoionisation der höheren Zustände nl durch den resonant auf der D-Linie eingestrahlten Laser möglich. Dadurch können alle Zustände nl oberhalb von $3p$ ionisiert werden (vor allem aber die hauptsächlich durch 'Energy Pooling' gebildeten $5s, 4d$ Atome):



Für Laserstrahlung mit einer Wellenlänge von $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$ hat Smith et al. /SGN 80/ die Querschnitte für diesen Prozeß bestimmt: $\sigma_{PI}^{4d} = 1.52 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ und $\sigma_{PI}^{5s} = 1.49 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$. Sie stimmen sehr gut mit theoretischen Berechnungen von Aymar /Aym 78/ überein. Gemäß der allgemeinen Tendenz von Photoionisationsquerschnitten nach dem Erreichen einer minimalen Photonen-schwellenenergie mit zunehmender Photonenenergie langsam abzunehmen /Mar 68/, sind die beiden gemessenen Querschnitte also obere Grenzwerte für Licht mit der Wellenlänge der Na D-Linien. Damit läßt sich mit $\dot{n}_e = ((n_{3p})^2 \sigma_{EP} \bar{\nu} \tau_{nl}) \sigma_{PI} F$ (wobei n_{3p} , σ_{EP} , $\bar{\nu}$, $\tau_{nl} = \tau_{4d}$ wie oben, $F = J/\hbar\omega$ der Fluß der Photonen mit der Energie $\hbar\omega$; für $J = 10^5 \text{ W/cm}^2$ ist $F = 3 \times 10^{23} \text{ Photonen cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) die Photoionisationsrate des durch 'Energy Pooling' besetzten 4d Zustandes zu $\dot{n}_e \approx 6.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ (entsprechend für 5s: $6.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$) abschätzen.

Als effizienter Folgeprozeß ist auch die Assoziative Ionisation beim Stoß durch 'Energy Pooling' erzeugter höherer Zustände $nl = 4d, 5s$ mit Atomen im Grundzustand möglich (siehe Abb. 3.1):



Wirkungsquerschnitte für diesen Mechanismus wurden von Kushawaha und Leventhal /KLe 82/ experimentell bestimmt. Für 5s und 4d hat man die von diesen Autoren angegebenen Werte $\sigma_{AI}^{4d} = 7.8 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ und $\sigma_{AI}^{5s} = 3.3 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$. Damit ergibt sich für die Ionenbildungsrate

$$\dot{n}_e = ((n_{3p})^2 \sigma_{EP} \bar{\nu} \tau_{nl}) (n_{3s} \sigma_{AI}^{nl} \bar{\nu}): 1.1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1} \text{ für } 4d \text{ und } 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1} \text{ für } 5s.$$

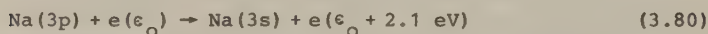
- (v) Denkbar, jedoch bisher kaum in der Literatur erwähnt, sind auch Ionisationsmechanismen im Na_2 Molekül -

bei Betrieb des Heatpipeofens mit Dampfdrucken in der Gegend einiger mbar liegen die Molekülkonzentrationen immerhin bei einigen Prozent (siehe Abb. 2.6). Mit einem auf den D-Linien eingestrahlichten Laser ist dabei die Dreiphotonenionisation möglich (siehe Abb. 3.1), die ähnlich wie die Zweiphotonenanregung (siehe Kap. 3.2.2) nur dann effektiv abläuft, wenn sie gemäß den Auswahlregeln über reale Zwischenzustände - also als Dreistufenprozeß - stattfindet. Obwohl es unwahrscheinlich ist, daß dies gerade für die Wellenlänge der atomaren Resonanz zutrifft, sei der Prozeß dennoch erwähnt, da in dieser Arbeit aus schon dargelegten Gründen (Produktion einer homogenen Dampfzone) der Dampf mit dem Laser mehr oder weniger weit entfernt vom Linienzentrum auf den Flügeln der D-Linien angeregt wird, wo es dann zufällig zu einem auf der Dreiphotonenionisation basierenden Ionisationseffekt kommen kann. Daten über die Effizienz, mit der ein solcher Prozeß ablaufen kann, existieren nicht. Erste Beobachtungen von resonant verstärkter Dreiphotonenionisation findet man in /HLS 78/.

Aus diesen einfachen Betrachtungen wird deutlich, daß vor allem die Assoziative Ionisation (Prozeß (ii)) und die auf dem 'Energy Pooling' aufbauenden Ionisationsprozesse (Prozesse in (iv)) dominierend an der Bildung von 'Seed'-Elektronen beteiligt sein müssen. Natürlich muß bei der allzu einfachen, getrennten Betrachtungsweise beachtet werden, daß alle in (i) - (v) aufgeführten Prozesse in komplizierter Weise miteinander verknüpft sind. Im Grunde genommen läßt sich der ganze Ionisationsprozeß nur durch Lösung entsprechender komplexer Ratengleichungen unter Berücksichtigung aller Prozesse beschreiben. Dies wäre nicht zuletzt auch wegen der zeitabhängigen Anregung des $3p$ Zustandes durch den gepulsten Laser die geeignete Beschreibungsform. Die in (i) - (iv) unter stationären Bedingungen abgeschätzten Raten für

die Bildung freier Elektronen sollen also nur als grobe Richtlinie für die Bedeutung der einzelnen Prozesse angesehen werden. Sie sagen dagegen wenig über die wahre zeitliche Entwicklung in der Anfangsphase der Ionisation aus.

Dies gilt auch für den auf den 'Seed'-Mechanismen aufbauenden weiteren zeitlichen Verlauf der Ionisation: Die anfänglich gebildeten Elektronen befinden sich natürlich in der Gegenwart einer, durch die fortwährende Anregung des Lasers auf den D-Linien, beträchtlichen Anzahl von angeregten Na(3p) Atomen. Deshalb besteht die Möglichkeit, daß diese Elektronen mit der Anfangsenergie ϵ_0 durch superelastische Stöße mit den Na(3p) Atomen

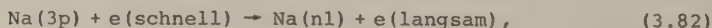


Energie gewinnen (also 'aufgeheizt' werden). Dabei beträgt der Gewinn an kinetischer Energie beim Stoß 2.1 eV. Der Querschnitt für diesen superelastischen Stoßprozeß ist nach dem 'Prinzip des Detaillierten Gleichgewichts' mit dem Querschnitt für direkte Elektronenstoßanregung durch

$$\sigma_{3p-3s}(\epsilon) = (g_{3p}/g_{3s}) ((\epsilon + E_{3p,3s})/\epsilon) \sigma_{3s-3p}(\epsilon + E_{3p,3s}) \quad (3.81)$$

gegeben und kann dadurch über den von Enemark und Gallagher gemessenen Wert für σ_{3s-3p} /EGA 72/ abgeschätzt werden. Er liegt für Elektronenenergien $\epsilon < 4 \text{ eV}$ zwischen 10^{-14} und 10^{-15} cm^2 .

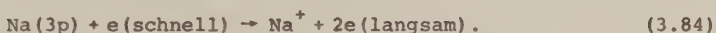
Nach einem solchen Stoß reicht die Energie der Elektronen dann aus, um in inelastischen Stößen mit den angeregten Atomen



Atome in höheren Zuständen $n1$ zu produzieren. Diese $Na(n1)$ Atome können ihrerseits durch die in (i), (iv) beschriebenen Prozesse oder durch Stöße mit Elektronen ionisiert werden:



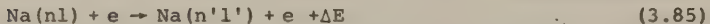
Elektronen, die zwei superelastische Stöße mit $Na(3p)$ Atomen vollzogen haben, können schon Atome im 1. Resonanzzustand ionisieren:



Ergebnis all dieser Prozesse ist dann mit fortschreitender Zeit das Anwachsen der Zahl der sekundär gebildeten Elektronen. Durch die dann zu späteren Zeiten dominierenden Elektronenstoßprozesse kann es schließlich zu einer kettenreaktionsartigen totalen Ionisation des Dampfes kommen. Ob dieses Endstadium des Ionisationsprozesses erreicht wird, hängt im wesentlichen von den gewählten experimentellen Bedingungen, insbesondere von der Dampfdichte, der Leistungsdichte und der Pulslänge des eingestrahlt Lasers ab.

In den Untersuchungen von Lucatorto und McIlrath /LMC 76, LMC 80/ wird beispielsweise eine 95%ige Ionisation einer 10 cm langen Dampfzone mit einer Dichte von 10^{16} cm^{-3} und einem resonant auf der D_2 -Linie eingestrahlt Dyelaser mit einer Intensität von 10^6 W/cm^2 sowie einer Pulslänge von $1 \mu\text{s}$ nach etwa 700 ns erreicht. (Das von Measures /MCS 81/ entwickelte LIBORS-Modell liefert unter äquivalenten Bedingungen einen solchen Ionisationsgrad schon nach 94 ns. Diese zu kurz bestimmte Zeit ist dabei die Folge der schon erwähnten Unzulänglichkeiten und Vereinfachungen des Modells, vor allem der Nichtbeachtung von zeitlicher Puls- und räumlicher Strahlform).

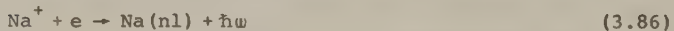
Generell besteht die Tendenz, daß eine solche totale Ionisation während des Laserpulses umso später erreicht wird, je kleiner die Teilchendichte oder je geringer die Laserintensität ist. Unter Beachtung dieses Verhaltens, der Daten von Lucatorto und McIlrath's und den in dieser Arbeit notwendigen Anregungsbedingungen (das Durchdringen des Na-Dampfes mit einer Dichte von 10^{16} cm^{-3} , einer Länge von einigen cm und Laserintensitäten von maximal 10^5 W/cm^2 ist nur auf den Flügeln möglich) kann bei den Untersuchungen in dieser Arbeit davon ausgegangen werden, daß es innerhalb des Dylaserpulses nicht zu dieser totalen Ionisation kommt. Dennoch wird auch in unserem Fall während des Anregungsprozesses durch den Laser die Elektronendichte durch die zuvor beschriebenen Prozesse ständig ansteigen, um dann durch Stoßprozesse wie (3.82), (3.83) oder insbesondere durch thermalisierende Stöße der Art



dazu beizutragen, daß die durch den 'Energie Pooling'-Pumpmechanismus aufgebaute Besetzungsinversion zwischen höheren Zuständen abgebaut wird.

Nach Beendigung des anregenden Laserpulses kommt es zu einer Reihe von Rekombinationsprozessen, die ebenfalls bei der Zerstörung der Populationsinversion mitwirken können:

(i) die Strahlungsrekombination:



(wobei $\text{Na}(nl)$ ein Atom in einem höheren Zustand nl und $h\nu$ die Energie des frei-gebunden Strahlungsübergangs ist). Die für diesen Prozeß zu erwartenden Wirkungsquerschnitte liegen typisch in der Größenordnung von 10^{-19} cm^2 /Bio 76/.

(ii) Die Dissoziative Rekombination:



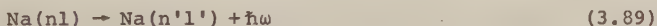
Die Wirkungsquerschnitte für diese Art von Prozeß liegen üblicherweise (auch für andere Systeme) in der Gegend von 10^{-14} cm^2 /Bio 76, Sch 76/, wobei prinzipiell die Effizienz des Prozesses durch den Verlauf der beteiligten Potentialkurven, die Elektronenenergie und den energetischen Zustand des Molekülions bestimmt wird.

Durch die vielen möglichen Rekombinationskanäle werden auch viele angeregte Zustände, vor allem jedoch 5s, 4d, 4f und darüberliegende Zustände, produziert (Abb. 3.1).

(iii) die Rekombination in einem Dreierstoßprozeß:



All diese Rekombinationsprozesse werden begleitet von Strahlungsrelaxation der dabei gebildeten höheren Zustände n1:



Die Geschwindigkeit, mit der das ionisierte Medium in den neutralen Zustand zurückgelangt, hängt somit neben Wirkungsquerschnitten für Rekombination auch von der Lebensdauer der angeregten Atome ab.

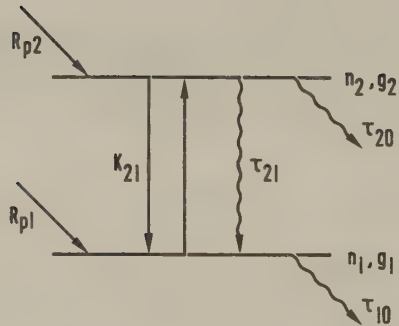


Abb. 3.10: Schema eines einfachen Zwei-Zustand Lasermodells.

● 3.4 Lasermodelle ●

● 3.4.1 Stationärer Fall; Schwellenbesetzungsinversion, Schwellenpumprate ●

In diesem Kapitel soll untersucht werden, inwieweit die in Kap. 3.2 diskutierten Pumpmechanismen die an sie gestellten Bedingungen für Lasertätigkeit zwischen höheren Na Zuständen erfüllen. Dazu werden im Folgenden die Kriterien für das Erreichen der Schwellenbesetzungsinversion und für die Schwellenpumprate abgeleitet (allgemeine Behandlung siehe /Sie 71/). Dies soll hier in einer stationären Betrachtungsweise geschehen (d.h. die Pumprate und somit auch das Verhalten des Lasers sei zeitunabhängig), wobei der jeweilige Laserübergang durch ein vereinfachtes Zwei-Level Lasermodell beschrieben wird (siehe Abb. 3.10).

Wir nehmen an, daß die beiden Laserzustände 2 und 1 durch entsprechende Pumpraten R_{p2} und R_{p1} bevölkert und durch entsprechende Strahlungsrelaxation sowohl zwischen Niveau 2 und 1 als auch von beiden Zuständen nach tiefer liegenden Zuständen entvölkert werden. Die Lasertätigkeit wird dann in der Ein-Modennäherung durch die 3 Ratengleichungen

$$\dot{n}_2 = -K_{21}q(n_2 - (g_2/g_1)n_1) - n_2/\tau_{21} - n_2/\tau_{20} + R_{p2} \quad (3.90)$$

$$\dot{n}_1 = K_{21}q(n_2 - (g_2/g_1)n_1) + n_2/\tau_{21} - n_1/\tau_{10} + R_{p1} \quad (3.91)$$

$$\dot{q} = v_a K_{21}q(n_2 - (g_2/g_1)n_1) + v_a K_{21}n_2 - q/\tau_c \quad (3.92)$$

beschrieben. Dabei sind n_2 und n_1 die Besetzungsdichten der Zustände 2 und 1, g_2 und g_1 die jeweiligen Entartungsfaktoren der beiden Zustände, τ_2 mit $1/\tau_2 = 1/\tau_{21} + 1/\tau_{20}$ und τ_{10} ihre totalen Lebensdauern und τ_{21} das Reziproke der Übergangswahrscheinlichkeit A_{21} zwischen beiden Zuständen. q ist die Zahl

der Photonen im Laserresonator mit einer Verweilzeit τ_c im Resonator ('cavity lifetime'), wobei sich τ_c über

$$1/\tau_c = (c/L) (2\alpha_0 + (1/2) \ln(1/R_1 R_2)) \quad (3.93)$$

bestimmen läßt (c : Lichtgeschwindigkeit; R_1, R_2 : Reflexionskoeffizienten der beiden Laserspiegel; L : Länge des Resonators, α_0 : allgemeine Verluste im Resonator durch Beugung, Reflexion an Brewsterfenstern, etc.). V_a ist das Modevolumen innerhalb des aktiven Mediums mit der Länge L_a . Für einen TEM₀₀ Mode mit einer Strahltaile d_0 ist

$$V_a = \pi L_a d_0^2 / 4. \quad (3.94)$$

Das gesamte Modevolumen im Resonator ist dann:

$$V = \pi L d_0^2 / 4. \quad (3.95)$$

K_{21} ist die Übergangswahrscheinlichkeit für stimulierte Emission und ist mit dem Wirkungsquerschnitt σ_{21} für stimulierte Emission und dem Modevolumen durch

$$K_{21} = \sigma_{21} c / V \quad (3.96)$$

verknüpft /Sve 76/. Der Wert für diesen Wirkungsquerschnitt für einen auf der Linienmitte oszillierenden Mode kann für eine Lorentz'sche Linienform (Gl. (3.23)) unter Verwendung der Gln. (3.2, 3.3 und 3.16) und mit dem bekannten Zusammenhang zwischen σ und dem Absorptionskoeffizienten über

$$\sigma_{21} = (\lambda^2 / 4\pi^2) (A_{21} / \delta\nu_c) \quad (3.97)$$

bestimmt werden. Ähnlich erhält man für eine Gauß'sche Linienform (Gl. (3.21)):

$$\sigma_{21} = (\pi \ln 2)^{1/2} (\lambda^2 / 4\pi^2) (A_{21} / \delta\nu_D). \quad (3.98)$$

Dabei ist λ die Wellenlänge des Übergangs, und δv_c und δv_D sind die jeweiligen Linienbreiten für die verschiedenen Linienformen.

In Gl. (3.92), der Ratengleichung für die Photonen, beachte man den 2. Term: Er berücksichtigt die spontante Emission von 2 nach 1 in den oszillierenden Lasermode. Dabei ist die spontane Übergangswahrscheinlichkeit in diesen Mode numerisch gleich der stimulierten Übergangswahrscheinlichkeit K_{21} , die durch ein elektromagnetisches Signal mit der Energie genau eines Photons aus diesem Mode erzeugt wird /Sie 71/. Wichtig ist der Term nur für das Anschwingverhalten des Lasers.

Unter Vernachlässigung von $V_a K_{21} n_2$ in Gl. (3.92) wird $\dot{q} \geq 0$, wenn die Besetzungsdifferenz Δn den Wert

$$\Delta n_{th} = (n_2 - (g_2/g_1)n_1)_{th} = (V_a K_{21} \tau_c)^{-1}, \quad (3.99)$$

die sogenannte Schwellenbesetzungsinversion, erreicht. Gl. (3.99) hat dabei aber nicht nur den Charakter einer Anschwingbedingung, sondern hat auch Einfluß auf den stationären Laserbetrieb. Dann gilt:

$$q(n_2 - (g_2/g_1)n_1) - (V_a K_{21} \tau_c)^{-1} = 0,$$

d.h. entweder ist $q = 0$ (triviale Lösung) oder die Besetzungsdifferenz nimmt den stationären Wert

$$\Delta n_{st} = (n_2 - (g_2/g_1)n_1)_{st} = (V_a K_{21} \tau_c)^{-1} \quad (3.99a)$$

an, d.h. im stationären Betrieb ist

$$\Delta n_{st} = \Delta n_{th}. \quad (3.100)$$

Die Besetzungsdifferenz ist dann also unabhängig von der Pump-rate und gerade gleich der Schwellenbesetzungsinversion.

Die minimale Pumprate zum Erreichen dieser Schwelle, die sogenannte Schwellenpumprate $R_{p,th}$, kann aus Gl. (3.90) und (3.91) mit Gl. (3.92) (mit $\dot{q} = 0$) sowie der Annahme, daß unterhalb der Schwelle $q = 0$ ist, zu /Sie 71/

$$R_{p,th} = (V_a K_{21} \tau_c \tau_2)^{-1} (1 - \tau_{10}/\tau_{21} - \xi \tau_{10}/\tau_2)^{-1} \quad (3.101)$$

bestimmt werden. Sie hängt entscheidend vom Verhältnis der Pumpraten $\xi = R_{p1}/R_p$ ($R_p = R_{p2}$) und dem Verhältnis der beteiligten Lebensdauern ab. Eine niedrige Schwellenpumprate erfordert niedrige Werte für diese Verhältnisse. Dies verlangt insbesondere einen selektiven Pumpmechanismus ($\xi = 0$ bedeutet $R_p = R_{p2} \gg R_{p1}$) sowie eine lange Lebensdauer des oberen gegenüber dem unteren Laserniveau. Im Fall $R_{p,th} \rightarrow \infty$ oder $R_{p,th} < 0$ kann keine Besetzungsinversion aufgebaut werden.

Sowohl die Schwellenbesetzungsinversion als auch die -pumprate hängen primär neben praktisch vorgegebenen Größen (V, V_a, τ_c) von K_{21} und damit mit Gl. (3.95) von σ_{21} ab, dem Wirkungsquerschnitt für stimulierte Emission. In Tab. 3.3 sind Werte dieser grundlegenden Größe für verschiedene IR Übergänge zwischen höheren Zuständen im Atom aufgelistet (benutzte Werte für die Energiezustände und Lebensdauern sind aus /WSM 69/ und /Hea 61/ entnommen). Dabei handelt es sich hauptsächlich um die von 5s und 4d ausgehenden Übergänge (also 5s - 4p und 4d - 4p), die durch die in Kap. 3 vorgestellten Pumpprozesse als Laserübergänge in Frage kommen. Daneben sind auch Übergänge zwischen darunterliegenden Zuständen aufgeführt, die eventuell ebenfalls als Laserübergänge in Erscheinung treten können. Bei der Berechnung von σ nach Gl. (3.97) wird angenommen, daß alle Übergänge dopp-
 lterverbreitert sind und die Stoßverbreiterung vernachlässigt werden kann (Daten über Stoßverbreiterung dieser Übergänge sind unbekannt; typische Linienbreiten sollten schätzungsweise nur bei $\delta\nu_c \approx 100$ MHz liegen ($\delta\nu_c = (\tau_{col})^{-1}$, wobei $\tau_{col} = n\bar{v}$; n: maximal 10^{17} cm^{-3} , $\bar{v} \approx 10^5 \text{ cm/s}$ und $\sigma \approx 10^{-14} \text{ cm}^2$)).

In der Tabelle sind ebenfalls für eine typische experimentelle Bedingung (siehe Resonator 2 in Tab. 2.3 mit $\tau_c = 7.35 \text{ ns}$ ($\alpha_o = 0$), $V = 9.54 \text{ cm}^3$ und $V_a = 0.24 \text{ cm}^3$) die Werte von K_{21} , Δn_{th} und $R_{p,th}$ (mit $\xi = 0$) für die verschiedenen Übergänge aufgeführt. Hervorzuheben ist die für Laserübergänge in Atomen typisch niedrige Schwellenbesetzungsinversionsdichte (vgl. mit $\Delta n_{th} \approx 10^9 \text{ cm}^{-3}$ beim He-Ne Laser mit $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ /Sie 71/).

Im Zusammenhang mit den in Kap. 3.2.1-3 diskutierten Pumpmechanismen sind dabei die möglichen Laserübergänge $5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ wichtig. Vergleicht man die dort abgeschätzten Pumpraten für die drei Bevölkerungsprozesse 'Energy Pooling'-Stöße zwischen Na(3p) Atomen, direkte ($\lambda_L = 602.23 \text{ nm}$) und stoßinduzierte ($\lambda_L = 615.42$ und 616.08 nm) Zweiphotonenabsorption (bei den im Experiment typisch vorliegenden Bedingungen mit $n = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ und $J = 10^5 \text{ W/cm}^2$ liegen die Pumpraten dieser drei Prozesse für die Bevölkerung von $5s$ etwa bei $10^{20} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$), so liegen diese etwa 3-4 Größenordnungen über der für die Übergänge abgeschätzten Schwellenpumpraten. Damit ist also Laseroszillation auf beiden Übergängen möglich. Dies trifft auch auf die Übergänge $4d_{5/2} - 4p_{3/2}$ und $4d_{3/2} - 4p_{3/2,1/2}$, die neben den übrigen $5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ im Fall der Population von $5s$ und $4d$ durch 'Energy Pooling' zu berücksichtigen sind. In diesem Fall kommt es dann wegen gemeinsamer unterer Laserzustände zur Konkurrenz zwischen beiden Übergängen. Geht man davon aus, daß beide oberen Laserzustände $5s$ und $4d$ durch 'Energy Pooling' etwa gleich stark bevölkert werden, (siehe (3.53)) und sich diese Bevölkerung bei $5s$ auf einen Zustand, bei $4d$ aber auf 3 Feinstrukturzustände verteilt (Besetzung der Feinstrukturzustände gemäß ihrer Entartungsfaktoren), wird wegen der niedrigsten erforderlichen Schwellenpumprate der Übergang $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ als der dominierende Laserprozeß erwartet (tendenziell wird dies noch dadurch verstärkt, daß die Besetzung des oberen Laserzustandes $4d$ durch den in entgegengesetzter Richtung zum 'Energy Pooling'-Pumpprozeß ablaufende Stoßprozeß (siehe Gl. (3.54a)) stärker abgebaut wird als die des Zustandes $5s$ (siehe Kap.

Tab. 3.3: Wichtige Daten für mögliche Laserübergänge (Wirkungsquerschnitt für stimulierte Emission σ_{21} , Schwellenbesetzungsinversion Δn_{th} , Schwellenpumprate $R_{p,th}$).

Übergang	λ (μm)	τ_2 (μs)	τ_{10} (μs)	τ_{21} (μs)	$\delta\nu_D^a$ (MHz)	σ_{21}^b (cm^2)	K_{21}^b (s^{-1})	Δn_{th}^b (cm^{-3})	$R_{p,th}^b$ ($\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$)
$5s_{1/2} - 4p_{3/2}$	3.4085	0.084	0.106	0.295	346	4.24×10^{-11}	1.33×10^{-1}	4.26×10^9	7.91×10^{16}
$5s_{1/2} - 4p_{1/2}$	3.4150			0.588		2.14×10^{-11}	6.73×10^{-2}	8.42×10^9	1.22×10^{17}
$4d_{5/2} - 4p_{3/2}$	2.3385			0.877		6.15×10^{-12}	1.93×10^{-2}	2.93×10^{10}	6.28×10^{17}
$4d_{5/2} - 4p_{1/2}$	2.3385	0.0535	0.106	0.877	504	6.15×10^{-12}	1.93×10^{-2}	2.93×10^{10}	6.28×10^{17}
$4d_{3/2} - 4p_{1/2}$	2.3354			0.175		2.31×10^{-11}	7.26×10^{-2}	7.81×10^9	3.73×10^{17}
$4p_{3/2} - 4s_{1/2}$	2.2062	0.106	0.0405	0.155	537	2.18×10^{-11}	6.85×10^{-2}	8.27×10^9	1.06×10^{17}
$4p_{1/2} - 4s_{1/2}$	2.2089			0.155		2.19×10^{-11}	6.88×10^{-2}	8.24×10^9	1.05×10^{17}
$4p_{3/2} - 3d_{5/2}$	9.0938			7.14		3.32×10^{-11}	1.04×10^{-1}	5.45×10^9	5.15×10^{16}
$4p_{3/2} - 3d_{3/2}$	9.0942	0.106	0.0202	62.5	130	3.80×10^{-12}	1.19×10^{-2}	4.76×10^{10}	4.49×10^{17}
$4p_{1/2} - 3d_{3/2}$	9.1409			6.66		3.59×10^{-11}	1.12×10^{-1}	5.06×10^9	4.78×10^{16}

^a bei 700 K;

^b bestimmt für: Resonator 2 (siehe Tab. 2.3) mit $\tau_c = 7.35 \text{ ns}$ (nur Auskoppelverluste)
 TEM_{00} Modenvolumen $V = 9.54 \text{ cm}^3$; Volumen des aktiven Mediums
 $V_a = 0.24 \text{ cm}^3$ (Modematching).

3.2.1; wenn davon ausgegangen wird, daß Grundzustandsdichten vorliegen, bei welchen sich dieser Rückprozeß bemerkbar macht, und daß keine anderen Zerstörungsmechanismen existieren)).

Eine detailliertere Behandlung dieser Konkurrenzprozesse zwischen $5s-4p$ und $4d-4p$ sowie zwischen den einzelnen Feinstrukturübergängen innerhalb der beiden Übergänge, sowie mögliche, auf diesen Laserprozessen aufbauende Lasertätigkeit zwischen darunterliegenden Zuständen erfordert eine zeitabhängige Beschreibung der möglichen Pump-, Relaxations- und Laserprozesse, wie sie im nächsten Kapitel vorgenommen wird. Eine zeitabhängige Behandlung ist nicht zuletzt auch wegen des gepulsten Pumplasers erforderlich.

Die hier gewählte stationäre Betrachtungsweise zeigt jedoch, daß grundsätzlich mit den in Kap. 3.2 behandelten Populationsmechanismen Lasertätigkeit zwischen den betrachteten höheren Zuständen im Na Atom möglich ist.

● 3.4.2 Dynamischer Fall ●

Zum detaillierten Verständnis der experimentellen Resultate ist es wegen der zeitabhängigen Pumpmechanismen notwendig, das Verhalten der Laserprozesse dynamisch zu betrachten.

Im allgemeinen ist dann die analytische Lösung der Raten-gleichungen schwierig, da diese durch auftretende Produkte der Variablen n und q (siehe Kap. 3.4.1) nichtlinear sind. Aus diesem Grund wird für die Beschreibung der Lasertätigkeit ein Computerprogramm erstellt, das es gestattet, das nichtlineare Ratengleichungssystem numerisch zu lösen.

● 3.4.2.1 'Energy Pooling'-Lasermode'll ●

Im Zusammenhang mit den experimentellen Untersuchungen (siehe Kap. 4) ist es wichtig zu beurteilen, ob und inwieweit

der durch den Anregungspuls des Pumplasers ebenfalls zeitabhängige 'Energy Pooling'-Pumpmechanismus die beobachtete IR Lasertätigkeit erklären kann. Dazu soll im folgenden ein Modell entwickelt werden, welches, basierend auf optischem Pumpen des 3s - 3p Übergangs, mit einem blitzlampengepumpten Dylaser und selektiver Bevölkering der 5s und 4d Zustände durch 'Energy Pooling' (siehe Kap. 3.2.1), Laseremission zwischen diesen Niveaus und dem darunterliegenden Zustand 4p sowie zwischen dem durch diese Laserprozesse bevölkerten 4p und dem 4s Niveau beschreibt. (Übergänge zwischen 4p und 3d bei $9\text{ }\mu\text{m}$ brauchen bei der Benutzung von Resonator 2 wegen zu starker Absorptionsverluste dieser Strahlung durch die CaF_2 Brewsterfenster nicht betrachtet zu werden.)

3.4.2.1.1 Vereinfachende Annahmen

Wie jedes Modell stützt sich auch dieses auf starke Vereinfachungen der in Wirklichkeit ablaufenden Prozesse. Die wichtigsten Vereinfachungen sind:

- (i) Die Pumplaserphotonen erzeugen lediglich stimulierte Absorption und Emission zwischen den 3s und 3p Zuständen. Photoionisation von den oberen Laserzuständen 5s und 4d oder laserinduzierte Stoßprozesse sollen, da sie nur sekundär in Erscheinung treten (siehe Kap. 3.3), vernachlässigt werden.
- (ii) Der Hauptstoßprozeß, an dem Atome im 3p Zustand beteiligt sind, ist der 'Energy Pooling'-Prozeß (siehe Kap. 3.2.1). Dies ist in Anbetracht der in Kap. 3.3 diskutierten Ionisationsmechanismen die wohl stärkste Vereinfachung. Da erwartet wird, daß die damit verknüpften, kompliziert ablaufenden Stoßprozesse jedoch erst zu späten Zeiten dominieren, sollen auch sie von der Betrachtung ausgeschlossen werden. Genauso sollen vorerst auch andere Stoßprozesse (hauptsächlich aber der zum 'Energy Pooling'-

Tab. 3.4: Grundlegende Ratengleichungen für das 'Energy Pooling'-Lasersmodell

Pump- und Relaxationsbilanzgleichungen

- $$\begin{aligned}
 (1) \quad \dot{n}_{5s1/2} &= (1/2)k_{EP}^{5s}(n_{3p1/2} + n_{3p3/2})^2 - n_{5s1/2}(A_1 + A_2 + A_3 + A_4) \\
 (2) \quad \dot{n}_{4d3/2} &= 0.2k_{EP}^{4d}(n_{3p1/2} + n_{3p3/2})^2 - n_{4d3/2}(A_5 + A_6 + A_7 + A_8) \\
 (3) \quad \dot{n}_{4d5/2} &= 0.3k_{EP}^{4d}(n_{3p1/2} + n_{3p3/2})^2 - n_{4d5/2}(A_9 + A_{10}) \\
 (4) \quad \dot{n}_{4p1/2} &= A_3n_{5s1/2} + A_7n_{4d3/2} - (A_{11} + A_{12} + A_{13})n_{4p1/2} \\
 (5) \quad \dot{n}_{4p3/2} &= A_4n_{5s1/2} + A_8n_{4d3/2} + A_{10}n_{4d5/2} - (A_{14} + A_{15} + A_{16} + A_{17})n_{4p3/2} \\
 (6) \quad \dot{n}_{4s1/2} &= A_{12}n_{4p1/2} + A_{15}n_{4p3/2} - (A_{18} + A_{19})n_{4s1/2} \\
 (7) \quad \dot{n}_{3d3/2} &= A_{13}n_{4p1/2} + A_{16}n_{4p3/2} - (A_{20} + A_{21})n_{3d3/2} \\
 (8) \quad \dot{n}_{3d5/2} &= A_{17}n_{4p3/2} - A_{22}n_{3d5/2} \\
 (9) \quad \dot{n}_{3p1/2} &= A_{10}n_{4s1/2} + A_{11}n_{5s1/2} + A_5n_{4d3/2} + A_{20}n_{3d3/2} - A_{23}n_{3p1/2} \\
 &\quad - k_{EP}^{4d}n_{3p1/2}^2 - k_{EP}^{4d}n_{3p1/2}n_{3p3/2} - k_{EP}^{5s}n_{3p1/2}^2 - k_{EP}^{5s}n_{3p1/2}n_{3p3/2} \\
 &\quad + B_1(t)(n_{3s1/2} - n_{3p1/2}) \\
 (10) \quad \dot{n}_{3p3/2} &= A_{19}n_{4s1/2} + A_{21}n_{5s1/2} + A_6n_{4d3/2} + A_9n_{4d5/2} + A_{21}n_{3d3/2} + A_{22}n_{3d5/2} - A_{24}n_{3p3/2} \\
 &\quad - k_{EP}^{4d}n_{3p1/2}n_{3p3/2} - k_{EP}^{4d}n_{3p3/2}^2 - k_{EP}^{5s}n_{3p1/2}n_{3p3/2} - k_{EP}^{5s}n_{3p3/2}^2 \\
 (11) \quad \dot{n}_{3s1/2} &= A_{11}n_{4p1/2} + A_{14}n_{4p3/2} + A_{23}n_{3p1/2} + A_{24}n_{3p3/2} \\
 &\quad + (1/2)k_{EP}^{4d}(n_{3p1/2} + n_{3p3/2})^2 + (1/2)k_{EP}^{5s}(n_{3p1/2} + n_{3p3/2})^2 \\
 &\quad - B_1(t)(n_{3s1/2} - n_{3p1/2})
 \end{aligned}$$
-

Laserphotonengleichungen

- $$\begin{aligned}
 (1') \quad \dot{A}_{5s1/2} &= -K_1q_1(n_{5s1/2} - (1/2)n_{4p3/2}) - K_2q_2(n_{5s1/2} - n_{4p1/2}) \\
 (4') \quad \dot{A}_{4p1/2} &= +K_2q_2(n_{5s1/2} - n_{4p1/2}) \\
 (5') \quad \dot{A}_{4p3/2} &= +K_1q_1(n_{5s1/2} - (1/2)n_{4p3/2}) \\
 (I) \quad q_1 &= V_a K_1 q_1(n_{5s1/2} - (1/2)n_{4p3/2}) + V_a K_1 n_{5s1/2} - q_1/\tau_c \\
 (II) \quad q_2 &= V_a K_2 q_2(n_{5s1/2} - n_{4p1/2}) + V_a K_2 n_{5s1/2} - q_2/\tau_c
 \end{aligned}$$
-

Tab. 3.5: Übergangswahrscheinlichkeiten für die im Modell benutzten Übergänge (nach /Hea 61/) mit Zuordnung der einzelnen Raten zu den im Programm gebrauchten Bezeichnungen.

Nr. Zustand oben	Übergang	Nr. Übergang	A (MHz)
1	$5s_{1/2} - 3p_{1/2}$	1	2.29
	$- 3p_{3/2}$	2	4.58
	$- 4p_{1/2}$	3	1.70
	$- 4p_{3/2}$	4	3.38
2	$4d_{3/2} - 3p_{1/2}$	5	9.87
	$- 3p_{3/2}$	6	1.97
	$- 4p_{1/2}$	7	5.72
	$- 4p_{3/2}$	8	1.14
3	$4d_{5/2} - 3p_{3/2}$	9	11.9
	$- 4p_{3/2}$	10	6.84
4	$4p_{1/2} - 3s_{1/2}$	11	2.35
	$- 4s_{1/2}$	12	6.44
	$- 3d_{3/2}$	13	0.15
5	$4p_{3/2} - 3s_{1/2}$	14	2.85
	$- 4s_{1/2}$	15	6.47
	$- 3d_{3/2}$	16	0.016
	$- 3d_{5/2}$	17	0.14
6	$4s_{1/2} - 3p_{1/2}$	18	3.26
	$- 3p_{3/2}$	19	16.4
7	$3d_{3/2} - 3p_{1/2}$	20	41.3
	$- 3p_{3/2}$	21	8.26
8	$3d_{5/2} - 3p_{3/2}$	22	49.5
9	$3p_{1/2} - 3s_{1/2}$	23	58.9
10	$3p_{3/2} - 3s_{1/2}$	24	59.1
11	$3s_{1/2}$	0	0

wobei $\Delta n_{th} = (V_a \sigma_{21} c \tau_c / V)^{-1}$.

- (v) Die üblichen geometrischen Vereinfachungen, daß es sich bei den Verteilungen der am Laserprozeß beteiligten Teilchen im aktiven Medium und der Photonen im Resonatormodevolumen um homogene Verteilungen mit scharfen Randbedingungen handelt (Gaußprofile werden durch Rechteckprofile ersetzt; aktive Volumen und Resonatormodevolumen wie in Gl. (3.94) und (3.95)).
- (vi) Die Vernachlässigung von räumlich-zeitlichen Effekten im Transfer der Strahlung durch das aktive Medium.

● 3.4.2.1.2 Ratengleichungen für $5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ Lasertätigkeit ●

Aus Gründen der Verständlichkeit sind die Ratengleichungen, die den Laserprozeß beschreiben, in 2 Gruppen aufgeteilt: eine, die sich nur mit den Pump- und Relaxationsprozessen innerhalb des atomaren Systems beschäftigt, und eine andere, die sich allein mit den durch die Laserphotonen ablaufenden Prozessen befaßt. Im Modell müssen dann die Terme der einen Gruppe zu den entsprechenden der anderen addiert werden, um den vollständigen, in den numerischen Rechnungen verwendeten Satz von Ratengleichungen zu erhalten.

(i) Die Pump- und Relaxationsratengleichungen des durch die 11 niedrigsten Feinstrukturzustände beschriebenen atomaren Na Systems sind in Tab. 3.4 aufgelistet (siehe dazu auch Abb. 3.11). Die Niveaus sind dabei von oben nach unten mit 1 - 11 durchnummeriert. Genauso wird mit den spontanen Übergangsraten für die erlaubten Übergänge verfahren (numeriert von 1 bis 24). Werte dieser Raten sind aus Tab. 3.5 zu entnehmen.

Gleichung (1) ist die Ratengleichung für den $5s_{1/2}$ Zustand. Im Pumpterm mit der 'Energy Pooling'-Ratenkonstante k_{EP}^{5s} wird dabei angenommen, daß sowohl $3p_{1/2}$ als auch $3p_{3/2}$ Atome durch Stöße untereinander oder mit sich selbst $5s_{1/2}$ oder $3s_{1/2}$ Atome erzeugen. Der Faktor $1/2$ in diesem Ausdruck rührt daher, daß k_{EP}^{5s} die Ratenkonstante für die Zerstörung von $3p$ Atomen ist. Im Stoß werden für jedes produzierte $5s$ Atom nämlich zwei $3p$ Atome vernichtet (siehe Gl. (3.52); die in Kap. 3.2.1 aufgeführten Ratenkonstanten für die Erzeugung von $5s$ und $4d$ müssen also hier mit einem Faktor 2 versehen benutzt werden). Der zweite Term in der Ratengleichung beschreibt die Entvölkerung des $5s$ Zustandes durch spontane Emission nach $3p$ und $4p$.

Die Gleichungen (2) und (3) beschreiben die Be- und Entvölkerungsraten des $4d_{3/2}$ und $4d_{5/2}$ Zustandes. Im Gegensatz zu $5s$ werden hier jedoch durch den 'Energy Pooling'-Stoßprozeß (Ratenkonstante k_{EP}^{4d}) zwei Zustände gepumpt. Dabei wird angenommen, daß diese beiden Zustände im Verhältnis ihrer Entartungsfaktoren populierte werden. Dieses Verhältnis beträgt $g_{3/2}/g_{5/2} = 4/6$, so daß zusammen mit dem Faktor $1/2$, der den gleichen Ursprung wie bei der Gleichung für $5s$ hat, der Populationsterm für $4d_{3/2}$ mit 0.2 und für $4d_{5/2}$ mit 0.3 gewichtet wird.

Die Gleichungen (4) bis (8) beschreiben einfach die Zu- und Abnahme der Bevölkerung der Zustände $4p_{3/2}$, $4p_{1/2}$, $4s_{1/2}$, $3d_{3/2}$, $3d_{5/2}$ durch Fluoreszenz.

Die zeitliche Veränderung der Population beider $3p$ Zustände werden durch die Gln. (9) und (10) ausgedrückt. Diese Gleichungen beinhalten die Depopulation durch spontane Emission und durch 'Energy Pooling', wobei diese Ausdrücke die Möglichkeit der Bildung von $5s$ oder $4d$ durch wechselwirkende Stöße zwischen Atomen in verschiedenen Feinstrukturzuständen und zwischen gleichen $3p$ Atomen berücksichtigen, die Population durch Strahlungskaskaden von oberen Zuständen

und im Fall des $3p_{1/2}$ Zustandes die Wechselwirkung mit dem Pumplaser. Dabei beinhaltet der optische Pumpterm sowohl stimulierte Absorption als auch Emission. Die darin auftretende Konstante B_I ist proportional zum Einstein B-Koeffizient bei der betreffenden Pumpwellenlänge und zur Strahlungsdichte des Pumplaserstrahles (zur ausführlichen Definition der Größe B_I : siehe Kap. 3.4.2.1.4).

Die Gleichung (11) ist die Bilanzgleichung für den Grundzustand mit der Wechselwirkung des Pumplasers mit dem atomaren System und den Gewinntermen durch Strahlungsrelaxation der oberen Zustände und durch 'Energy Pooling'-Stoßprozesse (Faktor 1/2 wie bei den Gleichungen für 5s und 4d).

(ii) In Tab. 3.4 sind ebenfalls die Bilanzgleichungen aufgeführt, die mit der oben aufgeführten Gruppe von Gleichungen gekoppelt werden müssen, wenn zusätzlich zu den normalen Pump- und Relaxationsprozessen auch Laserprozesse betrachtet werden sollen. Die ersten drei dieser Gleichungen ((I'), (4'), (5')) beschreiben die zeitliche Veränderung der Besetzung der $5s_{1/2}$, $4p_{3/2}$ und $4p_{1/2}$ Zustände durch stimulierte Emission und Absorption durch die Laserphotonen, die beiden anderen ((I), (II)) beschreiben die zeitliche Variation der Zahl der Laserphotonen im Resonatormodevolumen (wobei q_1 mit dem Übergang $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ und q_2 mit $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ verknüpft ist), wie sie prinzipiell auch schon in Kap. 3.4.1 für den allgemeinen Fall eines einfachen Zweizustandslasersystems eingeführt worden ist. Für den Dublettübergang sind die beiden Übergangswahrscheinlichkeiten K_1 und K_2 für stimulierte Emission, gemäß den dortigen Definitionen (siehe Gln. (3.96) und (3.98)), im Verhältnis der entsprechenden spontanen Übergangsraten beider Übergänge fest miteinander verbunden:

$$K_1/K_2 = A_{5s_{1/2}, 4p_{3/2}}/A_{5s_{1/2}, 4p_{1/2}} = 2. \quad (3.102a)$$

Zu beachten ist, daß bei den Photonenratengleichungen mit der absoluten Zahl der Atome im durch den Resonatormode vorgegebenen Teil des aktiven Mediums (Volumen V_a) gerechnet werden muß, da sie die Zu- und Abnahme der totalen Zahl von Photonen innerhalb des Resonatormodevolumens (Volumen V) mit der Zeit beschreiben. Deshalb werden die Terme, die Teilchendichten enthalten, mit V_a multipliziert. Dieser Faktor taucht nicht in den entsprechenden Termen der atomaren Ratengleichungen auf, da dort mit Teilchendichten gerechnet wird.

Die Photonenverlustterme beinhalten die Verweilzeit τ_c der Photonen im Resonator, die im wesentlichen durch die Auskopplung und allgemeine Verluste bestimmt wird. Da genaue Verluste unbekannt sind, soll angenommen werden, daß sie nur durch die Auskopplung festgelegt sind.

● 3.4.2.1.3 Rechnerprogramm ●

In dem auf der Basis des im vorangegangenen Abschnitt vorgestellten Ratengleichungssystems erstellten Computerprogramm (siehe Anhang A1) wird zweckmäßigerweise mit auf die Grundzustandsdichte n_0 (zum Zeitpunkt $t=0$) normierten Teilchendichten gearbeitet. Die benutzte Zeiteinheit im Programm ist ns.

Die Lösung des gekoppelten nichtlinearen Gleichungssystems erfolgt über ein einfaches Einzelschritt-Integrationsverfahren mit der Näherung:

$$n_i(t + \Delta t) = n_i(t) + \Delta t (dn_i/dt) \quad (3.103)$$

Vernünftige Ergebnisse ergeben sich bei einer Schrittweite Δt von 0.05 ns. Größere Werte führen teilweise zu Instabilitäten, kleinere Schrittweiten verändern dagegen die Ergebnisse kaum, erhöhen aber die Rechenzeit drastisch.

Im Programm werden im wesentlichen folgende Eingabe-
größen benötigt: Ein Fitparameter für die Anpassung an die
experimentellen Ergebnisse und mehrere Variablen, wie die
anfängliche Grundzustandsdichte n_0 , die Länge der Dampfzo-
ne L_a und die absorbierte Dyelaserpulsenergie E_{abs} . Dabei
wird jedoch statt der Schwellenbesetzungsinversion Δn_{th}
(siehe Kap. 3.4.2.1.1, (iv) und Gl. (3.102)) in den Rechnun-
gen die Rate für stimulierte Emission K (unter Beachtung
von Gl. (3.102a)) als eigentlicher Fitparameter benutzt
(prinzipiell ist es gleich, welchen der in Δn_{th} auftreten-
den Faktoren man als Anpassungsparameter heranzieht; K wird
deshalb gewählt, weil diese Größe neben der unbekannten
doppler- und stoßverbreiterten Linienbreite des Laserüber-
gangs insbesondere mit dem experimentell schlecht bestimm-
baren Modevolumen V die Unsicherheit in der Überlappung von
IR Laserstrahl und Pumplaserstrahl berücksichtigt; die
gleichfalls unsichere Resonatorverweilzeit τ_c ist als Fit-
parameter nur bedingt einsetzbar, da sie nach oben durch
reine Auskopplung ($\tau_c = 7.35$ ns) und nach unten durch die
einfache Resonatortransitzeit ($\tau_c = 4.5$ ns) beschränkt wird).

Andere Größen sind im Programm fest vorgegeben, wie die
spontanen Zerfallsraten der verschiedenen Zustände (siehe
Tab. 3.5), die 'Escape'faktoren für mögliches 'Radiation
Trapping' siehe Kap. 3.1.4; hauptsächlich auf dem $3s-3p$
Übergang, näheres dazu im folgenden Abschnitt), die Raten-
konstanten k_4 und k_5 für die Population von $4d$ und $5s$ durch
'Energy Pooling' (siehe (3.53)), die Strahltille des Reso-
natormode ($d = 0.15$ cm, bei angenommenem Modematching zwis-
schen Pumplaser- und IR Laserstrahl im Resonator sollen
die Querschnittsflächen von aktivem Volumen und IR Strahl
im Resonator gleich sein), die Verweilzeit τ_c der Photonen
im Resonator (berechnet aus den Auskoppelverlusten unter
Vernachlässigung der anderen Verluste), die Raten K_1 und
 K_2 für stimulierte Emission (berechnet mit Gl. (3.96) und
(3.98); wichtige, in ihnen enthaltene, primäre Größen:

Wellenlänge, angenommene Dopplerbreite und spontane Zerfallsrate für den jeweiligen Übergang und Resonatorvolumen V mit Resonatorlänge L ; mit einem variablen Multiplikationsfaktor versehen, handelt es sich dann um die im Programm benutzten Fitparameter), die Zeitabhängigkeit des Dyelasers und dessen zeitliches Integral (über dieses Integral soll im Zusammenhang mit der folgenden Diskussion der Größe B_I mehr gesagt werden).

Die Zeitabhängigkeit des Pumplasers wird durch eine numerische Funktion dargestellt, die im Maximum auf den Wert 1 normiert ist und durch Interpolation der tatsächlichen, mit einem Transienten Recorder punktweise gemessenen Pulsform des Dyelasers erhalten wird. Ihre Daten sind auf einer Datei gespeichert. Im Programm wird bei jedem neuen Iterationsschritt der laufende Wert dieser Funktion gelesen und mit dem optischen Pumpterm in den Gleichungen für $3s$ und $3p_{1/2}$ multipliziert. Auf diese Weise wird also die Zeitabhängigkeit des Pumplasers berücksichtigt.

● 3.4.2.1.4 'Radiation Trapping' und B_I im Programm ●

(i) 'Radiation Trapping': Wegen der hohen Dichte der Grundzustandsatome muß die Möglichkeit des resonanten Strahlungseinfangs der Fluoreszenzphotonen, die Übergängen zwischen höheren Zuständen und dem Grundzustand entspringen, im Modell berücksichtigt werden. Dies gilt also in unserem Fall für die Übergänge $3p_{3/2,1/2} - 3s_{1/2}$ und $4p_{3/2,1/2} - 3s_{1/2}$. 'Radiation Trapping' bei anderen Strahlungsübergängen ist im wesentlichen wegen der sehr viel kleineren Dichten für Zustände oberhalb des Grundzustandes zu vernachlässigen (Ausnahme: Übergänge nach den $3p$ Zuständen, siehe weiter unten).

Für die beiden Übergänge $3p_{1/2,3/2} - 3s_{1/2}$ ist dabei, wie in Kap. 3.1.4 gezeigt, der 'Escape'faktor oberhalb von etwa

$n_{3s} \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ unabhängig von der Grundzustandsdichte. Werte für die zylinderförmige Geometrie des aktiven Mediums sind dort für einen Zylinderradius von $r = 0.15 \text{ cm}$ angegeben (siehe (3.48) und (3.49)).

Im Gegensatz zu den $3p_{1/2, 3/2}$ Zuständen zerfallen die $4p_{1/2, 3/2}$ Zustände nicht nur durch Strahlung in den $3s_{1/2}$ Zustand, sondern auch nach $4s_{1/2}$ und $3d_{3/2, 5/2}$ (Übergänge nach den drei letztgenannten Zuständen sind dabei optisch dünn). Damit ergibt sich für die effektive spontane Zerfallsrate von $4p_{1/2, 3/2}$: $A_{4p}^{\text{eff}} = A_{4p-4s} + A_{4p-3d} + gA_{4p-3s} \approx A_{4p-4s}$ ($A_{4p-4s} \gg A_{4p-3d} + gA_{4p-3s}$; siehe Tab. 3.5; für die Abschätzung des 'Escape'faktors g nach Gl. (3.47) soll angenommen werden, daß die Ratenkonstanten für die Selbstverbreiterung für die Übergänge $4p_{1/2, 3/2} - 3s_{1/2}$ gleich den für die Übergänge $3p - 3s$ sind; genaue Werte für diese Ratenkonstanten sind unbekannt). 'Radiation Trapping' auf den Übergängen $4p - 3s$ spielt also für die Dynamik des Laserbetriebs keine entscheidende Rolle.

Natürlich sollte auch 'Trapping' der Resonanzfluoreszenz vom $5s$ Zustand und den beiden $4d$ Zuständen nach den beiden $3p$ Niveaus betrachtet werden. Man muß hier jedoch beachten, daß wegen der gepulsten Anregung durch den Pumplaser die Dichte der $\text{Na}(3p)$ Atome einer starken Zeit- und Ortsabhängigkeit unterliegt, die in der Behandlung des 'Trapping'-problems berücksichtigt werden müßte. Da dies zu einer doch drastischen Erhöhung des Rechenaufwandes führen würde, werden lediglich mögliche Auswirkungen einer Mitberücksichtigung dieser Prozesse durch die Einführung von zeitlich konstant angenommenen 'Escape'faktoren getestet, die willkürlich den Faktoren der $3p - 3s$ Übergänge gleichgesetzt werden.

Bei der Berücksichtigung von 'Radiation Trapping' müssen in den jeweiligen Ratengleichungen die entsprechenden Verlustterme durch spontane Emission mit den dazugehörenden

'Escape'faktoren multipliziert werden.

(ii) Die Rate für stimulierte Absorption: B_I .

Diese Größe muß, obwohl sie in den Berechnungen sehr wichtig ist, über eine mehr oder weniger unübliche Methode erlangt werden. Dies liegt vor allem an der Beziehung zwischen ihrer tatsächlichen Definition und der für ihre Bestimmung experimentell zugänglichen Größe.

Physikalisch exakt muß der optische Pumptermin, der Grund- und angeregten Zustand durch den Pumplaser verbindet, durch die Beziehung

$$\dot{n}_{3p} = (n_{3s}(t) - g n_{3p}(t)) \int u(\omega, t) B g(\omega) d\omega \quad (3.104)$$

ausgedrückt werden (wobei $g = g_{3s}/g_{3p}$ das Verhältnis der Entartungsfaktoren der beiden Zustände, $u(\omega, t)$ die zeitabhängige spektrale Verteilung der Energiedichte des gepulsten Strahlungsfeldes, $g(\omega)$ die normierte Linienform des Übergangs $3s - 3p$ und B der Einsteinkoeffizient für stimulierte Absorption ist). Das Integral in dieser Gleichung definiert exakt die Größe $B_I(t)$:

$$B_I(t) = \int u(\omega, t) B g(\omega) d\omega. \quad (3.105)$$

In üblichen Beschreibungen der Wechselwirkung von Licht mit Atomen wird davon ausgegangen, daß die spektrale Energiedichte $u(\omega)$ über den Frequenzbereich der atomaren Verteilungsfunktion $g(\omega)$ konstant ist. Unter dieser Annahme kann das Integral auf einfache Weise ausgeführt werden, und man erhält dafür den bekannten Ausdruck $u(\omega)B$. In unserem Fall jedoch ist $u(\omega)$ keinesfalls eine langsam variierende Funktion im Vergleich zu $g(\omega)$. Nimmt man andererseits an, daß die Linienbreite des Strahlungsfeldes sehr viel kleiner als die der atomaren Verteilungsfunktion ist, dann kann die Integration wieder einfach vollzogen werden, und man erhält in diesem Fall

$uB_g(\omega_L)$, wobei u der maximale Wert der Verteilung $u(\omega)$ und ω_L die Mittenfrequenz des eingestrahnten Strahlungsfeldes ist. Diese Näherung ist in dem durchgeführten Experiment dann gerechtfertigt, wenn die Anregung bei Wellenlängen vorgenommen wird, die sehr weit auf den Flügeln der Absorptionslinie liegen (siehe Kap. 3.2; typische Verstimmung in den Untersuchungen bei $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$: $\Delta\nu \approx 240 \text{ GHz}$, Linienbreite des Lasers $\delta\nu_L \approx 35 \text{ GHz}$). Oft wird jedoch auch näher zum Linienzentrum hin unter Bedingungen angeregt (siehe Tab. 3.1), wo diese Näherung nicht mehr geeignet ist.

Aus diesem Grund wird eine Methode zur Berechnung von B_I gewählt, die es gestattet, sie direkt aus einer experimentell bestimmten Größe, nämlich der zeitlich integrierten absorbierten Leistung des Pumplasers - der absorbierten Pumpulsenergie E_{abs} - zu bestimmen.

Diese absorbierte Pumpulsenergie kann einfach über die zeitliche Integration von Gl. (3.104) erhalten werden:

$$E_{\text{abs}} = \hbar\omega V_a \int \int (n_{3s}(t) - g(n_{3p}(t)) u(\omega, t) B_g(\omega) d\omega dt. \quad (3.106)$$

Dabei erstreckt sich die zeitliche Integration über den gesamten zeitlichen Verlauf des Pumpulses. Separiert man dann

$$u(\omega, t) = u(\omega) f(t), \quad (3.107)$$

wobei $f(t)$ die normierte Zeitabhängigkeit des Pumplasers ist ($f(t_{\text{max}}) = 1$), dann kann Gl. (3.106) weiter vereinfacht werden:

$$E_{\text{abs}} = \hbar\omega V_a \int u(\omega) B_g(\omega) d\omega \int (n_{3s}(t) - g n_{3p}(t)) f(t) dt \quad (3.108)$$

Unter der Näherung, daß sich gegenüber dem Grundzustand wenige Atome im angeregten Zustand befinden (keine Sättigung), also

$$n_{3p}(t) \ll n_{3s}(t) = n_o, \quad (3.109)$$

kann man Gl. (3.108) durch

$$E_{abs} = \hbar \omega V_a n_o \int u(\omega) B g(\omega) d\omega \int f(t) dt \quad (3.110)$$

ausdrücken. Damit wird

$$B_I = \int u(\omega) B g(\omega) d\omega = E_{abs} (n_o \hbar \omega V_a \int f(t) dt)^{-1}, \quad (3.111)$$

und

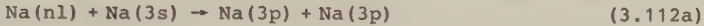
$$B_I(t) = B_I f(t) \quad (3.112)$$

kann dann bei bekannter Grundzustandsdichte n_o , aktivem Volumen V_a , Laserfrequenz ω und bekanntem Integral $\int f(t) dt$ (Wert 673.5 ns, numerisch über eine normierte repräsentative Zeitabhängigkeit $f(t)$ des Dylasers bestimmt; siehe Ende Kap. 3.4.2.1.3) einfach über E_{abs} bestimmt werden. Jedoch ist zu berücksichtigen, daß dieses Ergebnis nur dann richtig ist, wenn man weit davon entfernt ist, durch den Anregungsprozeß den Übergang $3s-3p$ zu sättigen. In vielen Fällen, in denen man auf den Flügeln der Absorptionslinie pumpt, ist diese Bedingung erfüllt. Experimentell kann das leicht überprüft werden: Die gemessene Absorption muß unabhängig von der eingestrahlten Laserintensität sein. An dieser Stelle sei bemerkt, daß die obige Annahme (3.109) jedoch in keiner Weise das Auftreten von Sättigung des Übergangs $3s-3p$ bei der Lösung der Rategleichungen im Modell verhindert. Dies kann zu irreführenden Ergebnissen führen und muß in jedem Fall überprüft werden.

● 3.4.2.1.5 Zusätzliche Prozesse und andere Laserübergänge ●

Wie schon in Kap. 3.2.1 erwähnt, spielen bei den im Experiment vorherrschenden hohen Na Dichten auch die zum 'Energy

Pooling'-Pumpmechanismus invers ablaufenden Stoßprozesse



eine Rolle. Sie werden im Lasermmodell dadurch berücksichtigt, daß in den entsprechenden Ratengleichungen für die Zustände $nl = 5s, 4d$ zusätzlich Verlustterme

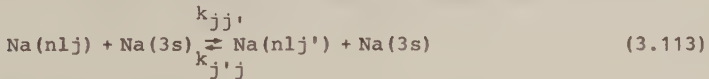
$$(1') \quad \dot{n}_{5s_{1/2}} = -k_{EPB}^{5s} n_{5s_{1/2}} n_{3s_{1/2}}$$

$$(2') \quad \dot{n}_{4d_{5/2}} = -k_{EPB}^{4d} n_{4d_{5/2}} n_{3s_{1/2}}$$

$$(3') \quad \dot{n}_{4d_{3/2}} = -k_{EPB}^{4d} n_{4d_{3/2}} n_{3s_{1/2}} \quad (3.112b)$$

auftauchen (Ratenkonstanten $k_{EPB}^{nl} = k_{nl}'$ siehe (3.54c)). Andere, mit diesen Prozessen verbundene Verlust- und Gewinnterme in den Bilanzgleichungen für den $3s$ und $3p$ Zustand sind gegenüber den anderen Ausdrücken für Be- und Entvölkerung in diesen Gleichungen zu vernachlässigen und sollen daher nicht berücksichtigt werden.

Bei diesen hohen Teilchendichten im aktiven Medium sind ebenfalls sehr effizient ablaufende Feinstrukturaustauschstöße ('j-mixing'-Stöße):



mit $j' = j + 1/2$

möglich. Diese Art des Energietransfers ist deshalb so effizient, weil der Stoßprozeß nahezu resonant abläuft (vgl. die zur Verfügung stehende thermische Energie $kT \approx 490 \text{ cm}^{-1}$ bei typisch 700 K mit den Energieunterschieden der beiden jeweils beteiligten Feinstrukturzustände für die interessierenden Zustände $3p, 4p$ und $4d$: 16.6, 5.6 und 0.04 cm^{-1}).

Gemessene Werte für Ratenkonstanten existieren nur im Fall des Feinstrukturaustauschs von $3p_{3/2}$ und $3p_{1/2}$ ($k_{3/2,1/2}^{3p} = 1.76 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$, siehe /Hue 82/; $k_{1/2,3/2}^{3p} = 3.52 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$, nach dem 'Prinzip des Detaillierten Gleichgewichts' aus $k_{3/2,1/2}^{3p}$ bestimmt). Sie sollen auch für die jeweiligen Ratenkonstanten $k_{j,j}$ des Bevölkerungstransfers innerhalb der $4p_{1/2,3/2}$ und der $4d_{3/2,5/2}$ Zustände verwendet werden.

Im Modell müssen somit beispielsweise für die beiden $4p$ Zustände Terme der Art

$$(4") \quad \dot{n}_{4p_{1/2}} = k_{3/2,1/2} n_{4p_{3/2}} n_{3s_{1/2}} - (g_{3/2}/g_{1/2}) k_{3/2,1/2} n_{4p_{1/2}} n_{3s_{1/2}} \quad (3.114)$$

$$(5") \quad \dot{n}_{4p_{3/2}} = (g_{3/2}/g_{1/2}) k_{3/2,1/2} n_{4p_{1/2}} n_{3s_{1/2}} - k_{3/2,1/2} n_{4p_{3/2}} n_{3s_{1/2}}$$

zusätzlich im Ratengleichungssystem (Addition der neuen Ausdrücke zu den alten) berücksichtigt werden (analog für $3p$, $4d$).

Wie schon zu Beginn des Kapitels erwähnt, sollen die in Kap. 3.3 diskutierten komplexen Ionisationsmechanismen im Modell nicht betrachtet werden. Dies würde wegen der zusätzlichen Gleichungen, die im wesentlichen das Ansteigen der Elektronentemperatur und -dichte durch eine Vielzahl von größtenteils eng gekoppelten Stoßprozessen beschreiben (siehe auch 'LIBORS'-modell von Measures et al. /MCS 81/), die Kompliziertheit des bestehenden Lasersmodells und damit den zu betreibenden Rechenaufwand um etliches steigern -

d.h. den Rahmen dieser experimentellen Arbeit sprengen.

Es sollen lediglich die Auswirkungen des parallel zum 'Energy Pooling'-Pumpprozess ablaufenden Verlustmechanismen für 5s, 4d und 3p durch Assoziative Ionisation im Stoß der Atome in diesen Zuständen mit Atomen im Grundzustand (im Fall von 5s und 4d, siehe Gl. (3.79) mit entsprechenden Ratenkonstanten $k_{AI}^{5s} = 3.3 \times 10^{-13}$ und $k_{AI}^{4d} = 7.8 \times 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$ /Kle 82/) und untereinander (im Fall von 3p, siehe Gl. (3.76) mit $k_{AI}^{3p} = 1.3 \times 10^{-12} \text{ cm}^3/\text{s}$ /Kle 82/) überprüft werden. Dazu müssen folgende zusätzliche Verlustterme in den Raten-
gleichungen berücksichtigt werden:

$$\begin{aligned}
 (1''') \quad \dot{n}_{5s_{1/2}} &= -k_{AI}^{5s} n_{5s_{1/2}} n_{3s_{1/2}} \\
 (2''') \quad \dot{n}_{4d_{5/2}} &= -k_{AI}^{4d} n_{4d_{5/2}} n_{3s_{1/2}} \\
 (3''') \quad \dot{n}_{4d_{3/2}} &= -k_{AI}^{4d} n_{4d_{3/2}} n_{3s_{1/2}} \\
 (9''') \quad \dot{n}_{3p_{1/2}} &= -k_{AI}^{3p} (n_{3p_{1/2}}^2 + n_{3p_{1/2}} n_{3p_{3/2}}) \\
 (10''') \quad \dot{n}_{3p_{3/2}} &= -k_{AI}^{3p} (n_{3p_{3/2}}^2 + n_{3p_{3/2}} n_{3p_{1/2}}) \\
 (11''') \quad \dot{n}_{3s_{1/2}} &= -k_{AI}^{5s} n_{3s_{1/2}} n_{5s_{1/2}} \\
 &\quad - k_{AI}^{4d} n_{3s_{1/2}} (n_{4d_{5/2}} + n_{4d_{3/2}}).
 \end{aligned} \tag{3.115}$$

Neben den in dem bisherigen Ratengleichungssystem enthaltenen Laserübergängen $5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ sollte prinzipiell, wie schon bei den Betrachtungen im stationären Fall erwähnt (siehe Kap. 3.4.1), auch Laseroszillation auf den Übergängen $4d_{5/2} - 4p_{3/2}$, $4d_{3/2} - 4p_{3/2,1/2}$ und $4p_{3/2,1/2} - 4s_{1/2}$ möglich sein. Dabei muß jeder einzelne dieser zusätzlichen Laserprozesse analog zu den Laserphotonengleichungen in Tab. 3.4 allgemein durch

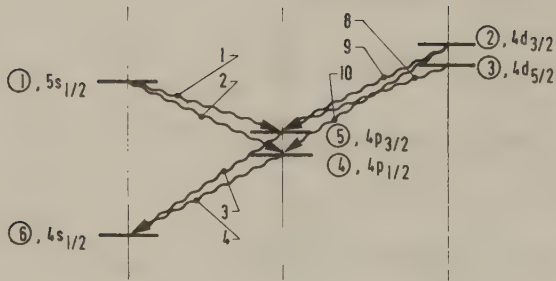


Abb. 3.12: Zuordnung der verschiedenen Laserübergänge zu der im Programm benutzten Bezeichnung.

$$\dot{n}_u = -K_i q_i (n_u - (g_u/g_l) n_l)$$

$$\dot{n}_l = +K_i q_i (n_u - (g_u/g_l) n_l) \quad (3.116)$$

$$\dot{q}_i = V_a K_i q_i (n_u - (g_u/g_l) n_l) + V_a K_i n_u - q_i / \tau_{ci}$$

im Ratengleichungssystem beachtet werden. Wobei die beiden ersten Gleichungen, die die zusätzliche Veränderung in der Bevölkerung des oberen (u) und unteren (l) Laserzustandes durch den Laserprozeß beschreiben, zu den jeweiligen Bilanzgleichungen für diese Zustände im atomaren Pump- und Relaxationsratengleichungssystem addiert werden müssen. Bei der Bilanzgleichung für die Laserphotonen des Übergangs i muß beachtet werden, daß die Verweilzeit τ_{ci} für die Photonen im Resonator für die verschiedenen Laserübergänge i verschieden sein kann (unterschiedliche Bedampfung der Laserspiegel für unterschiedliche Wellenlängen). Die Zuordnung der im Programm benutzten Ziffern i zu den Laserübergängen kann aus Abb. 3.12 entnommen werden.

Zur Übersicht sind in Tab. 3.6 (oberer Teil) die hauptsächlich benutzten Programmversionen für die verschiedenen, modifizierten 'Energy Pooling'-Lasermodelle aufgelistet.

Auf die Ergebnisse dieser Modelle wird in Kap. 4 im Zusammenhang mit der Vorstellung und Diskussion der experimentellen Ergebnisse eingegangen.

● 3.4.2.2 Lasermodelle für Zweiphotonenpumpen ●

Ähnlich wie im Fall des 'Energy Pooling'-Lasermodells kann auch die Dynamik der Laserprozesse im Fall des Zweiphotonenpumpmechanismus (Kap. 3.2.2) ein entsprechendes Ratengleichungsmodell beschrieben werden.

Tab. 3.6: Benutzte Programmversionen.

Version	Pumpmechanismus	Laserübergänge	Wesentliche Merkmale
Version 1	'Energy Pooling'-Stöße $\text{Na}(3p) + \text{Na}(3p)$ $\rightarrow \text{Na}(5s, 4d) + \text{Na}(3s)$	$5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$	Atom: 11-Zustandssystem (3s bis 4d); Pumpen von $5s_{1/2}$, $4d_{3/2,5/2}$ durch 'Energy Pooling'; Relaxationsprozesse: spontane Emission unter Berücksichtigung von 'Radiation Trapping' der Übergänge $3p - 3s$
Version 2	----	----	wie Version 1 'j-mixing' innerhalb $3p_{1/2,3/2}$, $4p_{1/2,3/2}$ und $4d_{3/2,5/2}$
Version 3	----	$5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ $4p_{3/2,1/2} - 4s_{1/2}$	wie Version 2
Version 4	----	----	wie Version 3 Verlustprozeß: 'Energy Pooling'- Rückprozeß
Version 5	----	$5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ $4p_{3/2,1/2} - 4s_{1/2}$ $4d_{3/2} - 4p_{3/2,1/2}$ $4d_{5/2} - 4p_{3/2}$	wie Version 2
Version 6	Zweiphotonenabsorption $\text{Na}(3s) + 2h\nu \rightarrow \text{Na}(5s)$	$5s_{1/2} - 4p_{3/2}$	Atom: 10-Zustandssystem (3s bis 5s); Pumpen von $5s_{1/2}$ durch Zweiphotonen- absorption; Relaxationsprozesse: spontane Emission unter Berücksichtigung von 'Radiation Trapping' der Übergänge $3p - 3s$
Version 7	----	$5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ $4p_{3/2,1/2} - 4s_{1/2}$	wie Version 6
Version 8	----	----	wie Version 7 Verlustprozeß: 'Energy Pooling'- Rückprozeß
Version 9	----	----	wie Version 8 'j-mixing' innerhalb $3p_{3/2,1/2}$ und $4p_{3/2,1/2}$

Dazu wird das im vorangegangenen Kapitel entworfene Modell in geeigneter Weise modifiziert:

In den Ratengleichungen für die Pump- und Relaxationsprozesse im atomaren System werden alle Terme, die mit dem optischen Pumpen des 3s - 3p Übergangs und der Be- und Entvölkerung der Zustände durch 'Energy Pooling' zusammenhängen, gestrichen. Da nur Zweiphotonenabsorption von 3s - 5s betrachtet werden soll, ist die Berücksichtigung der Bilanzgleichung für 4d hier nicht notwendig. Das optische Pumpen durch Zweiphotonenabsorption wird dann durch

$$(1') \quad \dot{n}_{5s} = B_{TP}(t)n_{3s} \quad (3.117)$$

$$(11') \quad \dot{n}_{3s} = -B_{TP}(t)n_{3s}$$

berücksichtigt. Diese Ausdrücke sind wieder zu den entsprechenden Ratengleichungen des atomaren Teils des vollständigen, durch die üblichen Photonengleichungen zu ergänzenden Ratengleichungssystems (siehe Tab. 3.4 unter Beachtung der oben dargestellten Änderungen) zu addieren. Dabei beschreibt $B_{TP}(t)$ die zeitabhängige Bevölkerungsrate durch Zweiphotonenabsorption

$$B_{TP}(t) = \Gamma_{TP} f(t)^2, \quad (3.118)$$

wobei $f(t)$ wie in Kap. 3.4.2.1 die im Maximum auf 1 normierte Zeitabhängigkeit des Dylaserpulses und Γ_{TP} die in Kap. 3.2.2 eingeführte Rate für Zweiphotonenabsorption ist (siehe Gl. (3.66)):

$$\Gamma_{TP} = 4.84 \times 10^5 (J_0 / (W/cm^2))^2 / (\delta\omega_L / s^{-1}) s^{-1} \quad (3.119)$$

(darin ist J_0 die Dylaserintensität in der Mitte des Linienprofils und $\delta\omega_L$ die Bandbreite des Dylasers). Γ_{TP} wird in dem zu diesem Ratengleichungssystem gehörenden Programm als Fitparameter für die Anpassung der Modellergebnisse an die

experimentellen Ergebnisse benutzt. Dabei ist zu beachten, daß die Zeiteinheit im Programm ns ist, Γ_{TP} also in GHz angegeben werden muß.

Die einzelnen Programmversionen sind im zweiten Teil von Tab. 3.6 aufgeführt. Die damit erhaltenen Ergebnisse sollen auch hier im Zusammenhang mit den experimentellen Beobachtungen im anschließenden Kapitel diskutiert werden.

● 4. EXPERIMENTELLE ERGEBNISSE, VERGLEICH MIT MODELLEN, DISKUSSION ●

Im Experiment wird im Na Dampf bei einer Vielzahl von Wellenlängen des eingestrahnten Pumplasers im Bereich zwischen 575 und 616 nm gepulste IR Laserstrahlung mit Wellenlängen zwischen 2 und 5 μm beobachtet. Abb. 4.1 zeigt das totale, zeitlich integrierte IR Lasersignal in Abhängigkeit von der Pumpwellenlänge des Dylasers in diesem Bereich (typische Bedingungen für dieses sogenannte Anregungsspektrum: Resonator 3 aus Tab. 2.3, Dampfdichte $n = 2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ und Dampflänge $l = 30 \text{ cm}$). Dabei können grundsätzlich zwei Gruppen von Anregungswellenlängen in diesem Anregungsspektrum unterschieden werden, die zu ebenfalls grundsätzlich verschiedener Lasertätigkeit im Na Dampf führen:

- (i) Pumpwellenlängen (in der Abbildung durch die entsprechenden atomaren Absorptionslinien gekennzeichnet), die Lasertätigkeit zwischen höheren Zuständen im Atom (hauptsächlich die Übergänge $5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$, $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ bei 3.4158, 3.4085 und 2.2062 μm) bewirken (man beachte vor allem die breite Struktur um die Na D-Linien).
- (ii) Ausschließlich diskrete, über den gesamten registrierten Spektralbereich verteilte Pumpwellenlängen, die jeweils zu Viellinienlaseroszillation im Bereich zwischen 4 und 5 μm zwischen Schwingungs-Rotationszuständen höherer elektronischer Zustände im Molekül führen.

Im folgenden soll nun detailliert auf die Untersuchung der einzelnen Laserprozesse eingegangen werden.

Dabei werden im ersten Teil dieses Kapitels die Untersuchungsergebnisse der Lasertätigkeit im Atom vorgestellt. Als überschaubarster Fall sollen zuerst die beiden Laserprozesse untersucht werden, die, wie sich zeigen wird, auf direkten, optisch resonanten Anregungsmechanismen basieren. Die dort erhaltenen Ergebnisse werden dann zusammen mit den

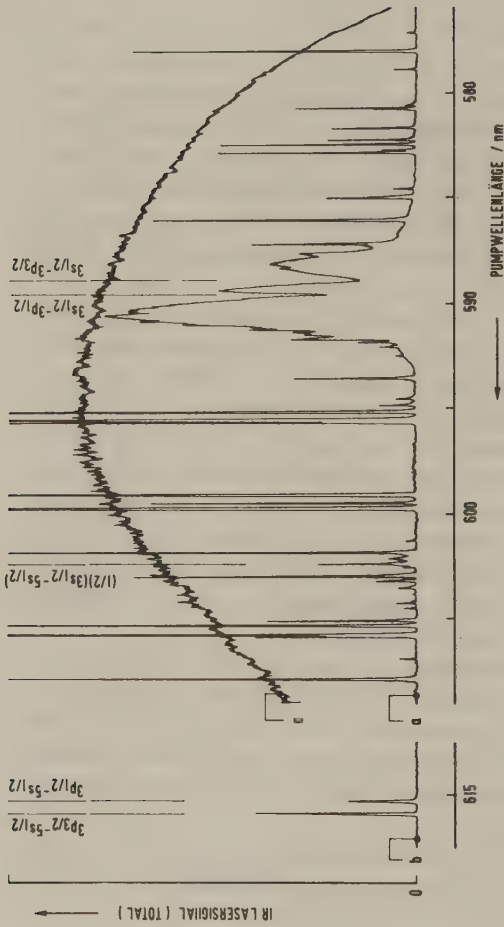


Abb. 4.1: a,b: Anregungsspektrum: zeitlich integrierte IR Laserintensität (wellenlängenun- aufgelöst im Bereich zwischen 2 und 5.5 μm) in Abhängigkeit von der Wellen- länge des anregenden Dylasers (Intensität der stärksten Linien etwa 20 - 25 mal größer als Maximum der breiten Struktur um 590 nm); verschiedene In- tensitätsskalen für a und b (Bedingungen: Laserresonator 3, l_{Dampf} = 30 cm, P_{Na} = 1 mbar).

c: Dylaserintensität in Abhängigkeit von der Pumpwellenlänge.

Resultaten der verschiedenen Lasermodelle und einer Reihe von Zusatzexperimenten zur Diskussion und Klärung der bei der primär auf der Anregung um die D-Linien basierenden Laseremission gemachten Beobachtungen herangezogen. Hierbei können wesentliche Informationen zur allgemeinen Problematik der resonanten Wechselwirkung intensiver Laser mit dichten Metalldämpfen gewonnen werden. Wie sich zeigen wird, haben die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen vor allem Auswirkungen auf die Beantwortung der Frage, in wie weit die in Kap. 3.2.1 vorgestellten 'Energy Pooling'-Stoßprozesse als selektive Anregungsmechanismen höherer Zustände (5s, 4d) dominierend in die kompliziert ablaufenden Prozesse in einem solchen System eingreifen. An dieser Stelle sei angemerkt, daß Teile dieser Experimente zu einer Zeit durchgeführt wurden /MHe 81/, zu der über mögliche Ursachen sichtbarer Fluoreszenz höherer Zustände /AAK 76/ nach der resonanten Anregung eines Na Dampfes auf den D-Linien stark spekuliert wurde (siehe z.B. /Gel 77, KSS 80/; vor allem wegen stark schwankender Angaben über den Wirkungsquerschnitt für 'Energy Pooling'-Stöße sowie die Möglichkeit von Ionisationsprozessen in resonant gepumpten Metalldämpfen, siehe Kap. 3.3).

Im zweiten Teil werden die Ergebnisse der IR Lasertätigkeit im Molekül vorgestellt.

Über einen weiteren Laserprozeß im Atom basierend auf Pumpwellenlängen zwischen 582 und 584 nm soll, da die damit verbundenen Pumpmechanismen noch ungeklärt sind, im Anhang (A4) berichtet werden.

● 4.1 IR Laseremission im Natriumatom ●

Für die Untersuchung der Lasertätigkeit zwischen höheren Zuständen im Natriumatom wird der in Abb. 2.1 schematisch gezeigte Aufbau benutzt. Wesentliche apparative Grundelemente sind dabei: der gekreuzte Heatpipeofen zur Erzeugung des aktiven Mediums (siehe Kap. 2.1.2 und Tab. 2.1), der als Resonator 2 bezeichnete IR Laserresonatoraufbau (siehe Kap. 2.3.1 und Tab. 2.3) und der blitzlampengepumpte Dylaser als Pumplaser (siehe Kap. 2.2).

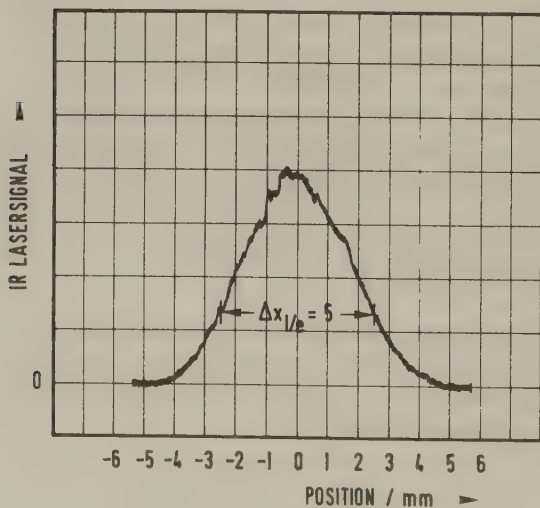


Abb. 4.2: Typisches, horizontales IR Laserstrahlprofil gemessen in einer Entfernung von 1 m vom Auskoppelspiegel (Durchmesser der Blende vor dem IR Detektor 0.1 mm).

Zur Identifizierung der verschiedenen beobachteten, optisch gepumpten Laserprozesse werden folgende grundlegende Untersuchungsmethoden benutzt: zum einen die Aufnahme von IR Laserspektren und das Messen der zeitlichen Abhängigkeit des gepulsten IR Lasersignals zur Analyse der erzeugten Laserstrahlung sowie zum anderen die Aufnahme von Anregungsspektren und das Studium der Abhängigkeit des IR Lasersignals von der Pumplaserleistung zur Untersuchung der am Laserprozeß beteiligten Pumpmechanismen. Die dafür benötigten Meßmethoden sind ausführlich in Kap. 2.4 beschrieben.

Daß es sich bei allen beobachteten Lasersignalen im Natriumdampf (auch bei der in Kap. 4.2 behandelten Laserstrahlung im Molekül) tatsächlich um Laserstrahlung handelt, wird in den einzelnen Fällen sichergestellt durch die Beobachtung von:

- (i) gerichteter Strahlung (typisches IR Laserstrahlprofil siehe Abb. 4.2, typische gemessene Strahldivergenz: 5 mrad),
- (ii) starker Abhängigkeit des IR Lasersignals von der Resonatorjustage (geringstes Verkippen eines der beiden Endspiegel läßt das Ausgangssignal um viele Größenordnungen bis auf einen vom Detektor nicht mehr nachweisbaren Pegel fallen) und
- (iii) eindeutigen Schwelleneffekten bei der Lasertätigkeit.

● 4.1.1 Zweiphotonengepumpte IR Lasertätigkeit ●

● 4.1.1.1 Ergebnisse: $5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$, $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ Lasertätigkeit ●

Wird der Pumplaser auf eine Wellenlänge von 602.23 nm abgestimmt, so beobachtet man starke IR Laseremission bei zwei Wellenlängen um 3.41 μm und schwache Laseremission bei einer Wellenlänge von 2.21 μm . Abb. 4.3 zeigt die Aufnahme des zeitlich integrierten IR Lasersignals (nicht wellenlängen-

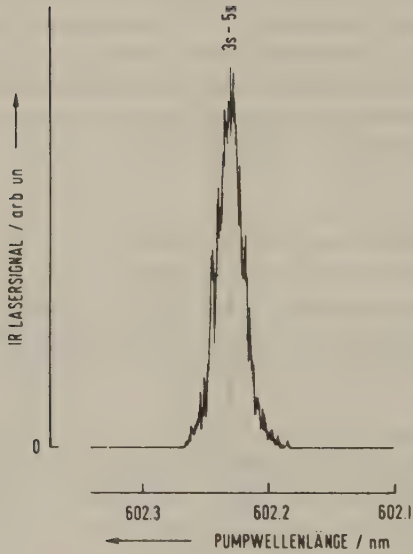


Abb. 4.3: Anregungsspektrum der IR Lasertätigkeit (total) um die Zweiphotonenresonanz $3s - 5s$ bei 602.23 nm (Bedingungen: Resonator 2, $l_{\text{Dampf}} = 3.4$ cm, $p_{\text{Tot}} = 2$ mbar mit $p_{\text{Na}}/p_{\text{Ar}} = 1/1$, eingestrahlte Pumppulsenergie $E_{\text{in}} = 4.3$ mJ).

genau aufgelöst) von der Pumpwellenlänge. Innerhalb der Meßgenauigkeit von 0.03 nm, stimmt diese Pumplinie mit der Wellenlänge des Zweiphotonenübergangs $3s_{1/2} - 5s_{1/2}$ überein. Die Breite des Übergangs gibt dabei im wesentlichen die Bandbreite des Dylasers wieder (in diesem Fall etwa 17 GHz). Bei den beobachteten IR Laserwellenlängen handelt es sich um die Übergänge $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ bei 3.415 μm , $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ bei 3.408 μm und den Kaskadenübergang $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ bei 2.206 μm . Für die beiden Übergänge $5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ wird das durch die Messung des IR Laserspektrums (siehe Abb. 4.4) verdeutlicht. Die gemessenen Linienpositionen stimmen innerhalb des Auflösungsvermögens des dazu benutzten Monochromators mit den bekannten Wellenlängen für diese Übergänge überein. Die Breite der Linien entspricht gerade diesem Auflösungsvermögen ($\Delta\lambda_{1/2} \approx 20 \text{ \AA}$).

Beobachtet wird diese Lasertätigkeit neben den hier diskutierten Bedingungen (Dampfplänge: 3.4 cm, Dampfdrucke: 1 und 10 mbar Na, Resonator 2) auch bei Dampfplängen, die von einigen cm bis 30 cm reichen, bei Dampfdrucken ab einigen Zehntel mbar (vorgegeben durch untere Betriebsgrenze des Heatpipeofens, siehe Kap. 2.1), bei kritischem und unterkritischem (bis zu 100 mbar Ar Puffergasdruck) Betrieb des Heatpipeofens, mit Dylaserleistungsdichten, die von den jeweiligen Bedingungen abhängen (typisch aber ab etwa 10^3 Watt/cm^2), und bei den verschiedensten Resonatoraufbauten (siehe Tab. 2.3).

Daß es sich bei dem Pumpmechanismus tatsächlich um einen Zweiphotonenabsorptionsprozeß handelt, wird an Hand von Abb. 4.5 deutlich. Darin ist die zeitlich integrierte IR Laserleistung (für den Übergang $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$, bei einer Na Dichte von 10^{17} cm^{-3}) in Abhängigkeit von der Pumpimpulsenergie E bezogen auf die Schwellenpumpimpulsenergie E_{th} aufgetragen ($E_{th} = 0.19 \text{ mJ}$, Pumpplaserstrahltaile: 3 mm, entsprechende Pumpplaserleistungsdichte $J_{th} = 2.7 \times 10^3 \text{ W/cm}^2$). Man erkennt deutlich den quadratischen Zusammenhang beider Größen, wie er für einen Zweiphotonenpumpprozeß charakteristisch ist. Abweichun-

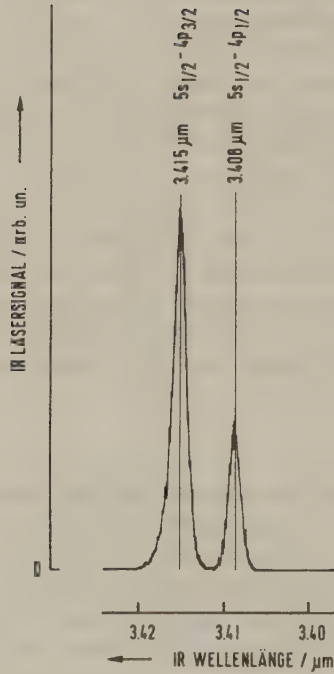


Abb. 4.4: IR Laserspektrum um 3.41 μm mit den beiden Laser-
übergängen $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ bei Wellenlängen von
3.415 und 3.408 μm (Bedingungen: Resonator 2,
 $l_{\text{Dampf}} = 3.4$ cm, $p_{\text{Tot}} = 2$ mbar mit $p_{\text{Na}}/p_{\text{Ar}} = 1/1$;
 $E_{\text{in}} = 2.5$ mJ, Dylaserwellenlänge $\lambda_{\text{in}} = 602.23$ nm).

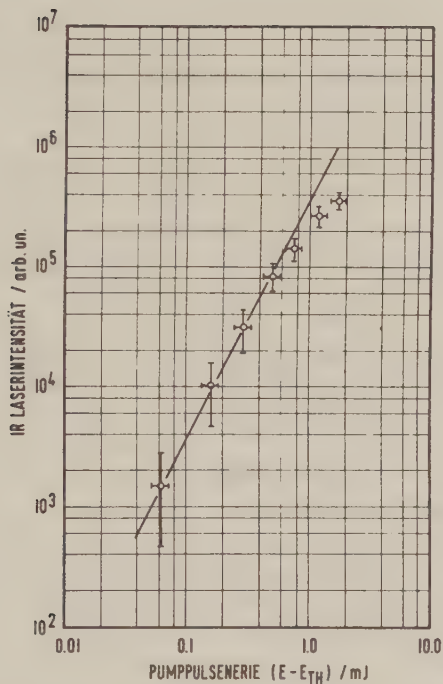


Abb. 4.5: Zeitlich integriertes IR Lasersignal ($5s_{1/2} - 4p_{3/2}$) in Abhängigkeit von der Pumpulsenergie oberhalb der Schwelle ($E_{th} = 0.1$ mJ) für eine typische experimentelle Bedingung (Resonator 2, $l_{Dampf} = 3.4$ cm, $p_{Tot} = 11$ mbar mit $p_{Na}/p_{Ar} = 10/1$). Die Ausgleichsgerade mit der Steigung 2 belegt die quadratische Abhängigkeit beider Größen.

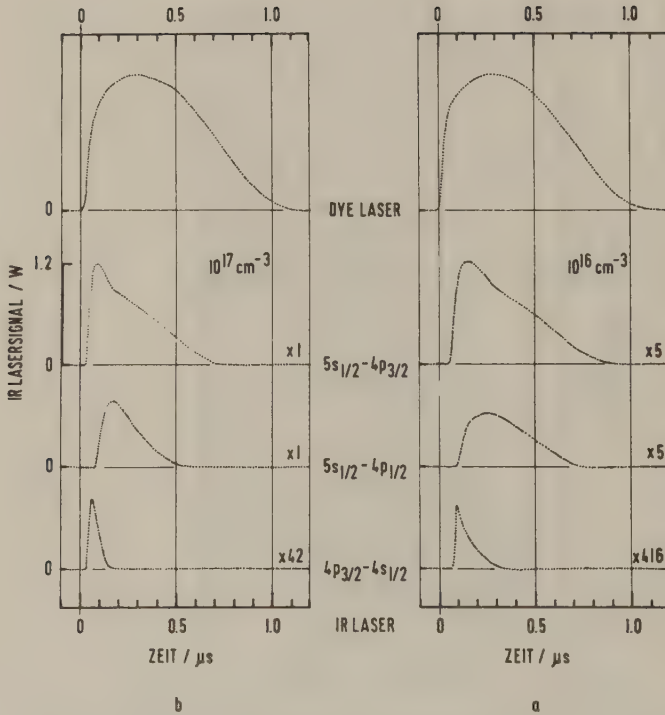


Abb. 4.6: Zeitabhängigkeit der beobachteten IR Laserpulse (unterer Teil) im Vergleich zum Dyelaserpuls (oben) (Bedingungen: Resonator 2, $l_{\text{Dampf}} = 3.4$ cm, $E_{\text{in}} = 1.3$ mJ, $\lambda_{\text{in}} = 602.23$ nm, (a): $p_{\text{Tot}} = 2$ mbar mit $p_{\text{Na}}/p_{\text{Ar}} = 1/1$ und (b): $p_{\text{Tot}} = 11$ mbar mit $p_{\text{Na}}/p_{\text{Ar}} = 10/1$).

gen davon treten bei höheren Pumpimpulsenergien auf.

Einen detaillierten Einblick in die Dynamik des Laserprozesses liefert eine Untersuchung des Zeitverhaltens der gepulsten Lasertätigkeit. Abb. 4.6 zeigt für zwei verschiedene Na Grundzustandsdichten (a: $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ und b: $n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) bei festgehaltener eingestrahlter Dyelaserpulsenergie ($E_{\text{in}} = 1.3 \text{ mJ}$, Strahltaille 3 mm ; entsprechend $J_{\text{in}} = 1.8 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$) die zeitliche Abhängigkeit der 3 beobachteten Laserübergänge (dabei handelt es sich um gemittelte Kurven von 100 Einzelschußaufnahmen; Abb. 4.6' zeigt eine typische Oszillographenaufnahme). Offensichtlich ist der Laserübergang $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ der dominierende Laserprozeß. Er erreicht wie erwartet (siehe Tab. 3.2) als erster Übergang die Schwelle (Einschaltzeiten $t_{\text{an}} = 40 \text{ ns}$ (bei $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) und 25 ns (bei $n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$)), direkt gefolgt von dem schwächeren Übergang $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$, der offensichtlich durch den Laserprozeß $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ gepumpt wird. Danach erst erreicht der mit $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ konkurrierende $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ Laserübergang die Schwelle ($t_{\text{an}} = 90 \text{ ns}$ (bei $n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) und 110 ns (bei $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$)). Tendenziell folgen diese beiden Konkurrenzprozesse nach dem Erreichen der Schwelle dem Pumpulaserpuls (vor allem der Stärkere von beiden). Dabei ist festzustellen, daß im Fall der größeren Na Dichte der Puls doch merklich früher endet als bei der kleinen Na Dichte (10% Pulsendezeit $t_{\text{aus}} = 620 \text{ ns}$ und 760 ns bei den beiden entsprechenden Druckken). Daneben bemerkt man, daß der durch den starken Laserübergang $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ ausgelöste sekundäre Laserprozeß $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ schon sehr früh aufhört (100 bzw. 200 ns nach Einsetzen dieser Lasertätigkeit für beide gewählte Drucke). Eng mit diesem Kaskadenübergang scheint die markante 'Peak'-Struktur zu Beginn des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulses verbunden zu sein. Sie verschwindet bei experimentellen Bedingungen, bei welchen der $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ Laserprozeß nicht zu beobachten ist. Dies geschieht bei kleineren Pumpimpulsenergien, wenn mit dem dann weniger stark gepumpten $5s$ Zustand und schwächeren $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserübergang auch der $4p_{3/2}$ schwächer bevölkert wird



Abb. 4.6': Typische Oszillographenaufnahme der $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Lasertätigkeit (unten) im Vergleich zum Pumpuls (oben) (jeweils 100 Einzelschüsse).

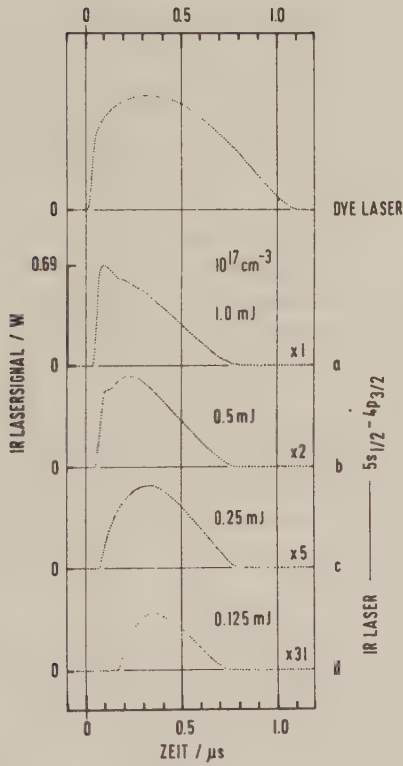


Abb. 4.7: Pulsform des beobachteten $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ IR Laser-
übergangs für 4 verschiedene Pumpulsenergien (a:
 $E_{in} = 1$ mJ; Abschwächungsfaktor gegenüber a: b: Fak-
tor 2, c: Faktor 4, d: Faktor 8; Bedingungen: Reso-
nator 2, $l_{Dampf} = 3.4$ cm, $p_{Tot} = 11$ mbar mit $p_{Na}/p_{Ar} =$
 $10/1$, $\lambda_{in} = 602.23$ nm).

und dadurch der Übergang $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ nicht mehr zum Anschwingen kommt. Abb 4.7 zeigt diese Abhängigkeit der Pulsform des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserübergangs bei verschiedenen Pumpulsenergien. Man erkennt deutlich, daß bei kleinen Pumpenergien nur noch Lasertätigkeit im Bereich maximaler Dye-laserleistung beobachtet wird - so wie man es für den Fall des Zweiphotonenpumpens erwartet (quadratische Intensitätsabhängigkeit).

Die maximal erreichte Peak Ausgangsleistung für den $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ liegt bei diesen Bedingungen (einem Na Druck von 10 mbar, einer Dampflänge von 3.4 cm und einer Pumpulsenergie von 1 mJ, die mit einer Pumplaserstrahltaile von 3 mm einer Pumpintensität von $1.4 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$ entspricht) bei etwa 0.7 W (entsprechende Ausgangsleistungen für die anderen Laserübergänge können aus den in Abb. 4.6 in den Abbildungen aufgeführten Faktoren abgeschätzt werden). Über die Effizienz der erzeugten IR Laserstrahlung läßt sich experimentell keine exakte Aussage treffen, da eine genaue Bestimmung der Absorption des Pumplaserstrahls wegen einer Reihe von Na_2 -Absorptionslinien des $X^1\Sigma_g^+ - A^1\Sigma_u^+$ Bandensystems, die sehr nahe bei der 3s - 5s Zweiphotonenresonanz liegen, nicht möglich ist. Eine obere Grenze für die absorbierte Leistung läßt sich jedoch grob über die Rate für Zweiphotonenabsorption (Gl. (3.66)), die unter den oben genannten Bedingungen etwa zu einer Absorption von einem Prozent führt ($k_v \approx n_{3s} \Gamma_{3s-5s} \cdot h\nu/J$), zu etwa 10 Watt abschätzen (bei einfallender Leistung von 10^3 Watt). Es muß also grob mit einer Effizienz von ungefähr 7% gerechnet werden. Dies ist mit der maximal möglichen Effizienz von etwa 9% für die Konversion zweier sichtbarer Photonen mit der Wellenlänge von 602.23 nm in ein IR Photon mit 3.415 μm zu vergleichen.

Weitere Details, insbesondere aber die Ursache für das frühe Abbrechen des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulses sollen im folgenden im Zusammenhang mit der Vorstellung einiger Modellergebnisse diskutiert werden.

● 4.1.1.2 Modellergebnisse, Diskussion ●

Abb. 4.8 zeigt im Überblick Ergebnisse der in Kap. 3.4.2.2 vorgestellten, auf Zweiphotonenpumpen basierenden Lasermodelle. Es handelt sich hier um 3 der in Tab. 3.6 aufgeführten Modellversionen, welche die wichtigsten möglichen Laserübergänge zwischen $5s_{1/2}$ und $4p_{3/2,1/2}$ sowie $4p_{3/2,1/2}$ und $4s_{1/2}$ beinhalten. Dabei werden die Ergebnisse des unbeeinflussten Lasersystems (Version 7, Tab. 3.6), welches neben dem Pumpmechanismus und den Laserprozessen nur Strahlungsrelaxation berücksichtigt, mit den Resultaten von zwei Modellversionen verglichen, die mögliche Auswirkungen von zum Pumpmechanismus konkurrierenden Prozessen auf die Laserdynamik untersuchen. Zum einen (Version 8, Tab. 3.6) wird die Möglichkeit der Entleerung des oberen Laserzustands $5s_{1/2}$ durch den zum 'Energy Pooling'-Prozeß invers ablaufenden Stoßprozeß (Gl. (3.54a), Kap. 3.2.1 und 3.4.2.1.5) und zum anderen (Version 9, Tab 3.6) die zusätzliche Beeinflussung der Laserprozesse durch 'j-mixing'-Stöße (Kap. 3.4.2.1.5) innerhalb der $4p_{3/2}$ und $4p_{1/2}$ Laserzustände betrachtet.

Die in dieser Abbildung gezeigten Resultate wurden für eine Na Grundzustandsdichte von $n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und eine Länge des aktiven Mediums von $l_a = 3.4 \text{ cm}$ erlangt. Die Raten für stimulierte Emission K der einzelnen Laserübergänge sind aus Tab. 3.3 entnommen. Die Pumplaserpulsform entspricht der eines repräsentativ gemessenen Dylaserpulses. Die Integrations-schrittweite beträgt in allen Modellen 0.05 ns. Für alle Laserübergänge wird die gleiche, nur durch Auskopplungsverluste bestimmte Resonatorverweilzeit $\tau_c = 7.35 \text{ ns}$ benutzt. Als Fitt-parameter für die Anpassung der Ergebnisse an die experimentellen Resultate dient die Zweiphotonenpumprate Γ_{TP} (in diesem Fall: $\Gamma_{TP} = 10^{-6} \text{ GHz}$; diese Rate entspricht nach Gl. (3.119) bei einer Bandbreite des Dylasers von etwa 17 GHz einer auch im Experiment typisch benutzten Pumplaserleistungsdichte von etwa $1.5 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$). Aus den angegebenen IR Laserphotonenzahlen (siehe Abb. 4.8) lassen sich die entsprechen-

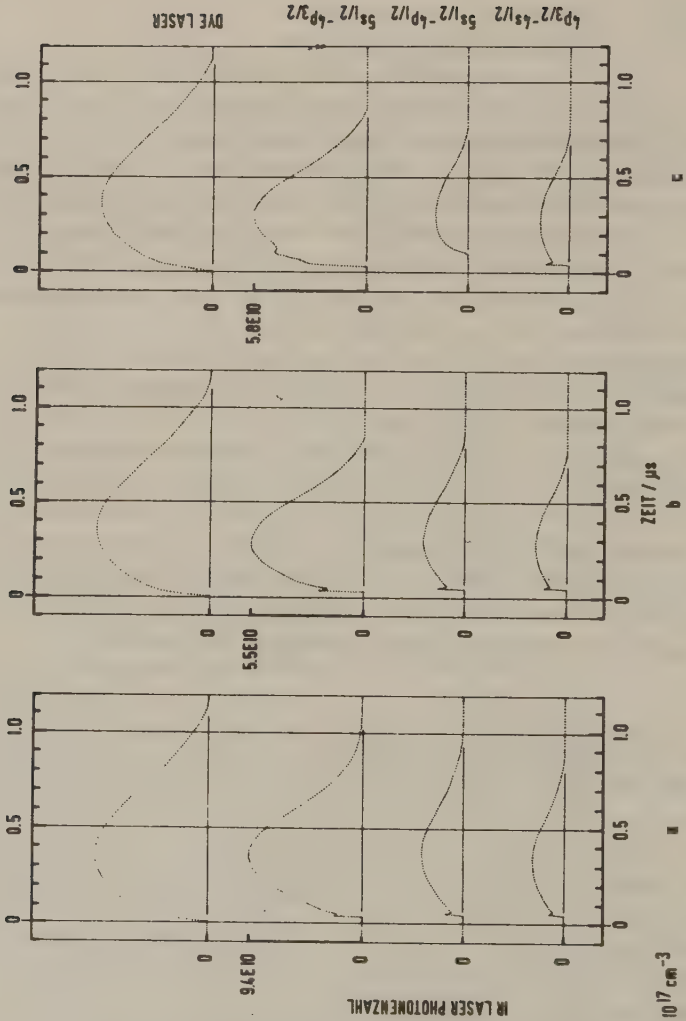


Abb. 4.8: Berechnete IR Laserpulsformen der Übergänge $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$, $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ und $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ für drei verschiedene Modelle (a: Version 7, b: Version 8, c: Version 9, siehe Tab. 3.6) im Vergleich zum Pump-puls (Bedingungen: $l_{\text{Dampf}} = 3.4 \text{ cm}$, $n_{\text{Na}} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, $\Gamma_{\text{TP}} = 10^{-6} \text{ GHz}$, sonst siehe Text).

den Laserausgangsleistungen über

$$P_{\text{Laser}} = q\hbar\omega/\tau_c \quad (4.1)$$

bestimmen (dabei ist q die Anzahl der Photonen im Resonator, $\hbar\omega$ die Energie eines dieser Photonen und τ_c die Resonatorverweilzeit).

Ergebnisse dieser Modelle sind:

- (i) Modellversion 7 (nur Strahlungsrelaxation; siehe Abb. 4.8a):
- Pulsverläufe aller drei Laserprozesse ($5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ und $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$) folgen dem Pumplaserpuls
 - die Einschaltzeiten für diese Pulse betragen (in der Reihenfolge $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$, $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ und $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$): 25, 35, 35 ns
 - das Verhältnis der maximalen Ausgangsleistung beträgt entsprechend: 1 / 0.36 / 0.27.

Der Übergang $4p_{1/2} - 4s_{1/2}$ wird im Modell - wie auch im Experiment - nicht beobachtet. Nebensächlich bei der gewählten Zweiphotonenpumprate sind die deutlich erkennbaren, schnellen 'Peak'strukturen nach dem Einsetzen der Laserpulse. Hierbei handelt es sich um typische Einschwingvorgänge, wie sie bei gepulsten Lasern unter gewissen Umständen auftreten können (Stichworte: Relaxationsschwingungen, 'Spiking', siehe /KMÜ 69/). Da sie oft im Vergleich zur Ansprechzeit des Detektors (etwa 60 ns) sehr schnell sind, werden solche Phänomene im Experiment meist ausgewaschen und sind daher nur selten zu beobachten (siehe Anhang A2). Ein Vergleich der Pulsformen mit den experimentell beobachteten Verläufen (Abb. 4.6) zeigt, daß für die betrachtete Na Dichte (10^{17} cm^{-3}) die Laserpulse im Experiment früher abbrechen.

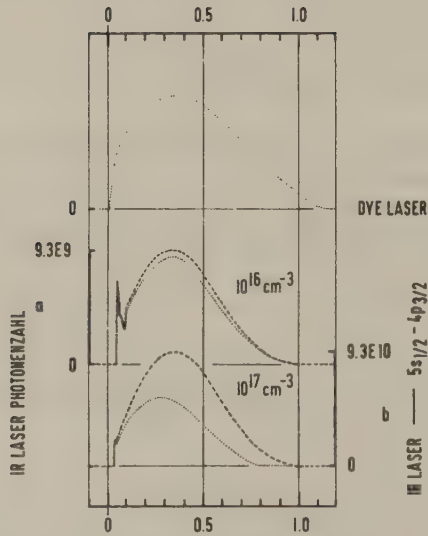


Abb. 4.9: Vergleich der berechneten $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulsform ohne (----, Modellversion 7) und mit 'Energy Pooling'-Rückprozeß (- · - · - ·, Modellversion 8) für zwei verschiedene Grundzustandsdichten (a: $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, b: $n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$; sonstige Bedingungen: $l_{\text{Dampf}} = 3.4 \text{ cm}$, $\Gamma_{\text{TP}} = 10^{-6} \text{ GHz}$, sonst siehe Text).

- (ii) Modellversion 8 (Strahlungsrelaxation, Entleerung von $5s_{1/2}$ durch den 'Energy Pooling'-Rückprozeß; siehe Abb. 4.8b):

Vergleich mit Version 7:

- Alle Laserpulse um etwa 100 ns kürzer
- Einschaltzeiten aller Laserpulse innerhalb 5 ns unverändert
- Ausgangsleistungen der einzelnen Laserübergänge um 41% niedriger; Verhältnis der maximalen Ausgangssignale unverändert.

Daß die Beeinträchtigung der Lasertätigkeit durch den 'Energy Pooling'-Rückprozeß wie erwartet von der Grundzustandsdichte abhängt, zeigt Abb. 4.9. Dort ist die zeitliche Abhängigkeit des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Lasersignals für die im Experiment benutzten beiden Grundzustandsdichten (neben $n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ auch 10^{16} cm^{-3}) für die beiden Modellversionen 7 und 8 dargestellt (sonst gleiche Bedingungen wie in Abb. 4.8). Deutlich erkennt man den Einfluß dieses Stoßprozesses, der bei $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ noch zu vernachlässigen ist (Pulsamplitude nur um etwa 7% kleiner bei Berücksichtigung des Prozesses), jedoch bei $n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ drastisch wird (in der oben beschriebenen Weise). Diese Ergebnisse für den $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserübergang lassen sich gut mit den experimentell ermittelten Resultaten vergleichen, wo dieser Übergang gerade bei $n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ auch merklich kürzere Pulse liefert (siehe Abb. 4.6).

Was der zusätzlich eingeführte Mechanismus wirklich zu leisten vermag, verdeutlicht Abb. 4.10 im Vergleich mit Abb. 4.7. In dieser Abbildung ist die Abhängigkeit des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Pulsverlaufs bei $n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ für verschiedene Zweiphotonenpumpraten dargestellt (das hier verwendete Modell berücksichtigt dabei im Gegensatz zu Modellversion 8 nur den $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserübergang; wie in Abb. 4.7 entspre-

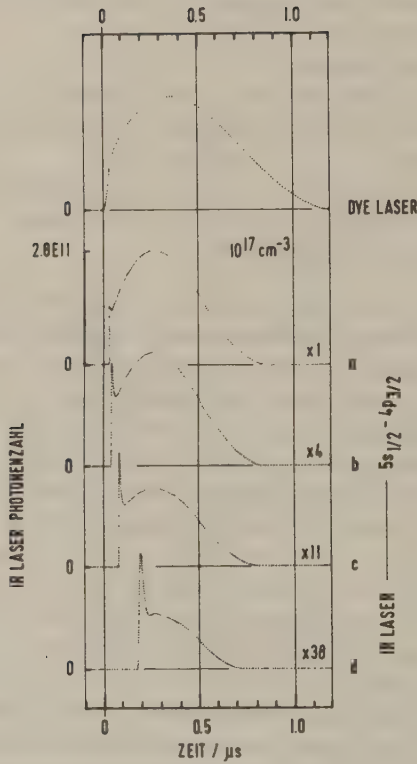


Abb. 4.10: Abhängigkeit der berechneten $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulsform von der Pumprate (Γ_{TP} : 5.67×10^{-7} GHz (a), 1.44×10^{-7} GHz (b), 3.6×10^{-8} GHz (c) und 9×10^{-9} GHz (d); entsprechende Variationen der Pump Laserintensität: Abschwächungsfaktoren 1, 2, 4, 8 von a bis d, wie in Abb. 4.7; Bedingungen: $l_{Dampf} = 3.4$ cm; $n_{3S} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, Modellversion 8 ohne $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ und $4p - 4s$ Laserübergänge, sonst siehe Text).

chen diese verschiedenen Pumpraten Abschwächungsfaktoren 1, 2, 4 und 8 für die eingestrahlte Pumplaserintensität). Die Anpassung der Pumprate Γ_{TP} wird für den Vergleich zwischen Modell und Experiment so vorgenommen, daß die über das Modell erhaltene Pulseinschaltzeit mit der experimentell bei größter Pumpleistung ermittelten übereinstimmt. Dies ist für eine Pumprate von $\Gamma_{TP} = 5.67 \times 10^{-7}$ GHz erfüllt. Ihr entspricht eine Dyelaserintensität von ungefähr 1.1×10^4 W/cm² (bei einer Dyelaserbandbreite von etwa 17 GHz). Dieser Wert ist mit einer im Experiment benötigten Pumplaserintensität von 1.4×10^4 W/cm² zu vergleichen. Im Rahmen der in Kap. 3.4 diskutierten Vereinfachungen in den Lasermodellen ist diese Übereinstimmung befriedigend. Dies trifft auch für den Vergleich von experimentell beobachteter 'Peak'ausgangsleistung des betrachteten Laserpulses für die jeweilige maximale Pumprate zu. Werden im Fall der Modellergebnisse 2.2 Watt (entsprechend 2.8×10^{11} Photonen im Laserresonator) erhalten, so mißt man im Experiment 0.7 Watt (Modellversion 8 liefert einen Wert von 0.55 Watt, was die Übereinstimmung noch besser werden läßt).

Sehr gut werden auch Pulsanfangs- und Pulsendzeiten für alle 4 verschiedenen Pumpraten wiedergegeben. (In Abb. 4.10 sieht man auch deutlich den Einfluß der Pumprate auf das Verhalten des Einschwingvorgangs.) Auch für die Schwellenpumpleistung ist der Vergleich zwischen Experiment ($J_{th} \approx 1.4 \times 10^3$ W/cm²) und Modell ($\Gamma_{TP}^{th} = 3.9 \times 10^{-9}$ GHz, oder entsprechend $J_{th} \approx 920$ W/cm²) befriedigend. Dieser Schwellenpumprate entspricht bei $n_{3s} = 10^{17}$ cm⁻³ eine Bevölkerungsrate von 5s: $\dot{n}_{5s} = 3.9 \times 10^{17}$ cm⁻³s⁻¹. Sie ist mit dem in Tab. 3.3 aufgeführten Wert $R_{p,th} = 7.91 \times 10^{16}$ cm⁻³s⁻¹ für den Übergang $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ zu vergleichen.

Neben der relativ guten Beschreibung des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserübergangs, werden jedoch im Vergleich mit

Abb. 4.6 sowohl das Einsetzen des Konkurrenzprozesses $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ als auch der Pulsverlauf des Kaskadenübergangs $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ durch dieses Modell schlecht wiedergegeben.

(iii) Modellversion 9 (Strahlungsrelaxation, Entleerung von $5s_{1/2}$ durch 'Energy Pooling'-Rückprozeß, 'j-mixing'-Stöße zwischen $4p_{1/2}$ und $4p_{3/2}$; Abb. 4.8c): Vergleich mit Modellversuch 8:

- deutlicher Einfluß auf Pulsverlauf des $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ Laserübergangs
- Einsatz der Lasertätigkeit von $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ und $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$: 25, 40 ns; Einsetzen von $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ etwa 50 ns später
- Ausgangsleistung für $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ geringfügig um etwa 5% höher, für $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ gleich, für $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ um etwa 17% niedriger; Verhältnis: 1 / 0.28 / 0.27.

Dieses Modell zeigt nach Einführung des zusätzlichen Stoßprozesses die erwartete Reaktion: Nach Einsetzen der Lasertätigkeit auf dem $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Übergang und der damit verbundenen starken Bevölkering des $4p_{3/2}$ Zustandes, wird dieser über 'j-mixing'-Stöße nach $4p_{1/2}$ entleert. Dies hat zum einen durch die Entleerung des $4p_{3/2}$ Zustandes eine erhöhte Ausgangsleistung des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Übergangs und zum anderen durch die stärkere Bevölkering des $4p_{1/2}$ Zustandes eine Beeinträchtigung der Lasertätigkeit auf dem $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ Übergang zur Folge. Dieser Dublettübergang erreicht somit erst später seine Schwelle und besitzt dann auch eine kleinere Ausgangsleistung. Das Einsetzen des $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ Laserübergangs bleibt dagegen - wie erwartet - unbeeinflusst, da dieser Übergang eng mit dem ihn pumpenden $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Übergang verknüpft ist. Man beachte die 'Dip'-struktur zu Beginn des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulsverlaufs, bei der

es sich ebenfalls um einen Einschwingvorgang handelt, der auf dem Einsetzen des mit diesem Übergang durch das obere Laserniveau verknüpften $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ Laserpulses beruht.

Vergleicht man nun die so berechneten mit den experimentellen Pulsverläufen (Abb. 4.6), dann werden außer dem immer noch zu langen und zu kräftigen $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ Laserpuls alle übrigen Details relativ gut wiedergegeben. Vor allem kann man auch vermuten, daß ein frühzeitiges Abbrechen dieses Laserübergangs zu der im Experiment beobachteten Struktur im anfänglichen Verlauf des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulses führt: Das Ende des $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ Laserpulses muß eine plötzliche Abnahme der Ausgangsleistung des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Pulses bewirken. Ein zusätzlich beobachtetes, gleichzeitiges Einsetzen des $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ Laserübergangs verstärkt diese Erscheinung. Daneben wird das Verhältnis in den Ausgangsleistungen der beiden $5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ Dublettübergänge, wie aus dem Verhältnis der Raten für stimulierte Emission (Gl. (3.102a)) zu vermuten ist, etwa 2 zu 1 (dies liefert auch eine Rechnung des Modells ohne $4p_{3/2,1/2} - 4s_{1/2}$ Laserübergänge; siehe auch als Vergleich Abb. 4.6).

Da es im Hinblick auf den in Kap. 4.1.3 untersuchten Laserprozeß zwischen $5s$ und $4p$ hauptsächlich darauf ankommt zu zeigen, daß direktes optisches Pumpen von $5s$ einen quasistationären Laserbetrieb zwischen $5s$ und $4p$ aufrechterhalten kann - das Hauptinteresse also im wesentlichen auf den primären Laserprozessen $5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ liegt -, soll auf mögliche Ursachen für einen im Gegensatz zum Modell doch sehr kurzen und schwachen sekundären $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ Laserübergang nicht näher eingegangen werden. (Quasistationär bedeutet hier wie auch im Folgenden, daß trotz des dynamischen Pumpprozesses die Besetzungsinversion nach schnell gedämpften Relaxationsschwingungen fest an die Schwellenbesetzungsinversion gebunden ist.) Sicher sind dafür eine Reihe von im Modell

unberücksichtigt gebliebener Prozesse verantwortlich. Bei den gewählten hohen Teilchendichten ist beispielsweise Selbstabsorption auf den $4s_{1/2} - 3p_{3/2,1/2}$ Übergängen möglich (der 3p Zustand wird zum einen durch Pumpen auf dem roten Flügel der Na D-Linie (siehe z.B. Abschätzung in Abschnitt nach Gl. (3.69)) und zum anderen durch Strahlungsrelaxation von höheren Zuständen bevölkert), die sich durch eine damit verbundene längere effektive Lebensdauer des unteren Laserniveaus des $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ Übergangs in der beobachteten Weise bemerkbar machen kann. Darüber hinaus können aber auch Stoßprozesse wie z.B. Energietransferstöße zwischen 4p und 3d (Energieunterschied zwischen diesen beiden Zuständen: 1097 cm^{-1} oder $2kT$ bei $T = 700 \text{ K}$) auf den Laserprozeß Einfluß nehmen.

Daß Energietransferprozesse solcher Art im Experiment eine Rolle spielen, zeigt die Beobachtung von 4d - 3p Fluoreszenz senkrecht zum IR Resonator mit bloßem Auge (mit Hilfe eines Gitters), wenn der Pumplaser auf die Zweiphotonenresonanz $3s - 5s$ abgestimmt ist. Diese Fluoreszenz stammt vermutlich von einem direkten Energietransferprozeß zwischen 5s und 4d. Hier beträgt die Energiediskrepanz sogar 1348 cm^{-1} . Ähnliche Beobachtungen in Flammenexperimenten /vDi 78/ bekräftigen unsere Annahme (Querschnittsdaten für solche Prozesse sind unbekannt).

Einflüsse von Photoionisation des 5s Zustandes durch den Pumplaser können vernachlässigt werden. Einzelne Testläufe der Modellversion 9 mit einer zusätzlichen Verlustrate in der Ratengleichung für den 5s Zustand durch die Berücksichtigung von Photoionisation zeigen, daß sich merkliche Effekte in den Pulsverläufen bei den maximal im Experiment benutzten Pumplaserintensitäten erst für einen Photoionisationsquerschnitt ergeben, der etwa um einen Faktor 100 - 1000 größer ist als der in Kap. 3.3 angegebene Wert (siehe nach Gl. (3.78)). Dies gilt genauso für die Berücksichtigung von Assoziativer Ionisation als möglicher Entleerungsmechanismus von $5s_{1/2}$.

Ebenso beeinflusst Reabsorption der Fluoreszenzphotonen auf dem $4p - 4s$ Übergang - wie in Kap. 3.4.2.1.4 bereits angedeutet - den zeitlicher Verlauf der Pulsverläufe kaum. Für probeweise eingeführte 'Escape'faktoren in der Größe der Faktoren für den $3p - 3s$ Übergang (siehe (3.48, 49) ergeben sich lediglich geringfügige Veränderungen gegenüber den in Abb. 4.8b gezeigten Pulsverläufen (Anzahl der Laserphotonen nimmt um einige Prozent auf dem Übergang $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ zu und auf den Übergängen $5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ um den entsprechenden Prozentsatz ab; sonst bleiben die Pulsverläufe gegenüber Modellversion 8 unverändert, insbesondere die Pulsdauer).

● 4.1.1.3 Ergebnisse, $4d - 4p$ Lasertätigkeit ●

Ähnlich wie bei der Zweiphotonenresonanz $3s - 5s$, erhält man auch IR Laseremission, wenn der Pumplaser auf die Zweiphotonenresonanz $3s - 4d$ abgestimmt wird. Dies ist bei einer Pumpwellenlänge von 578.73 nm der Fall (siehe Anregungsspektrum in Abb. 4.11). Dabei kann der Unterschied in den Anregungswellenlängen für die beiden Feinstrukturübergänge ($3s_{1/2} - 4d_{5/2}$ und $3s_{1/2} - 4d_{3/2}$) mit einem Wellenlängenunterschied von 0.024 nm durch die zu große Linienbreite des Pumplasers nicht aufgelöst werden (die Doppelstruktur der Linie kommt durch die nur schrittweise Durchstimmbarkeit des Dylasers in Schritten von 35 GHz zustande). Dadurch werden beide Feinstrukturzustände des $4d$ Zustandes durch den Laser gepumpt, was also 3 IR Laserübergänge von $4d$ nach $4p$ erwarten läßt.

Abb. 4.12 zeigt das IR Laserausgangsspektrum um 2.34 μm . Man erkennt deutlich zwei Linien, bei welchen es sich zum einen um die beiden Übergänge $4d_{3/2,5/2} - 4p_{3/2}$ bei 2.338 μm , die nur 0.035 cm^{-1} auseinander liegen und vom Monochromator dadurch nicht aufgelöst werden können, und zum anderen um den Übergang $4d_{3/2} - 4p_{1/2}$ bei 2.335 μm handelt. Das Intensi-

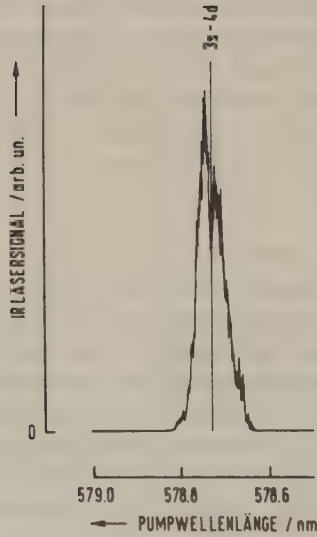


Abb. 4.11: Anregungsspektrum der IR Lasertätigkeit (total) um die Zweiphotonenresonanz 3s - 3s bei 578.73 nm (Bedingungen: Resonator 2, $l_{\text{Dampf}} = 3.4$ cm, $p_{\text{Tot}} = 2$ mbar mit $p_{\text{Na}}/p_{\text{Ar}} = 1/1$, $E_{\text{in}} = 0.6$ mJ).

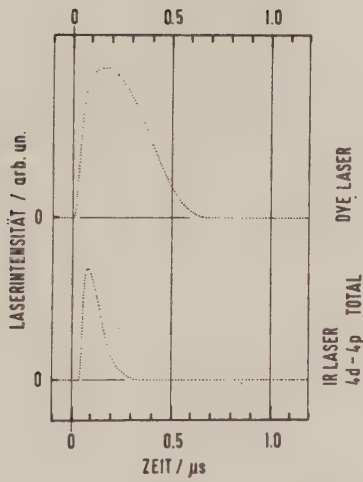


Abb. 4.13: Zeitabhängigkeit der beobachteten 4d-4p Lasertätigkeit (wellenlängenun aufgelöst), verglichen mit dem Pumpuls (Bedingungen wie in Abb. 4.11)

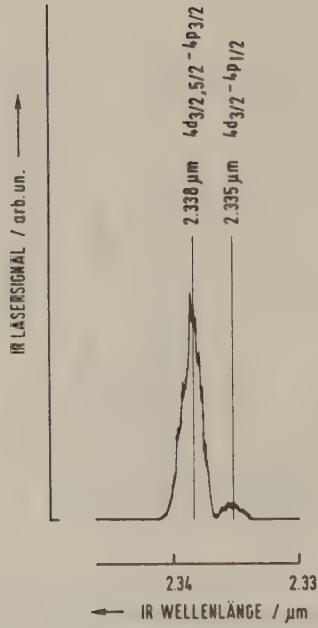


Abb. 4.12: IR Laserspektrum um 2.34 μm mit den Laserübergängen 4d - 4p ($\lambda_{in} = 578.73$ nm; sonstige Bedingungen wie in Abb. 4.11).

tätsverhältnis beider beobachteter Linien beträgt etwa 16 / 1. Diese Unterschiede können über die verschiedenen Schwellenpumpraten für die einzelnen Übergänge (siehe Tab. 3.3), über die verschiedenen Zweiphotonenpumpraten (ähnliche Berechnung wie Gl. (3.61)) für die beiden möglichen 4d Feinstrukturzustände sowie das Konkurrenzverhalten der gekoppelten Laserübergänge erklärt werden. Danach wird der Übergang $4d_{5/2} - 4p_{3/2}$ als der dominierende Laserprozeß von den 3 möglichen erwartet.

Abb. 4.13 zeigt den zeitlichen Verlauf des beobachteten IR Laserpulses im Vergleich zum Pumppulsverlauf. Der Pumpuls ist bei dieser Wellenlänge nur noch etwa $0.5 \mu s$ lang und seine Energie beträgt maximal 0.6 mJ. Die Grundzustandsdichte beträgt 10^{16} cm^{-3} (sonstige Bedingungen wie beim Zweiphotonenpumpen 3s - 5s). Hier fällt auf, daß der IR Laserpuls schon bei dieser Dichte sehr kurz ist (vergleiche dazu Abb. 4.6) und darüber hinaus - verglichen mit der Lasertätigkeit 5s - 4p - sehr schwach ist (maximale Pulsausgangsleistung: etwa 0.1 mW). Ursachen dafür könnten beispielsweise sein: die geringere Pumpleistung, eine andere Resonatorverweilzeit für diese IR Wellenlänge, möglicher Energietransfer von 4d nach 4f (Energieunterschied nur 39 cm^{-1} ; sogenanntes 'l-mixing') und ein größerer Querschnitt für den 'Energy Pooling'-Rückprozeß für 4d (siehe Gl. (3.54c)), der sich dann schon bei $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ deutlicher bemerkbar machen sollte als im Falle der 5s - 4p Laseremission.

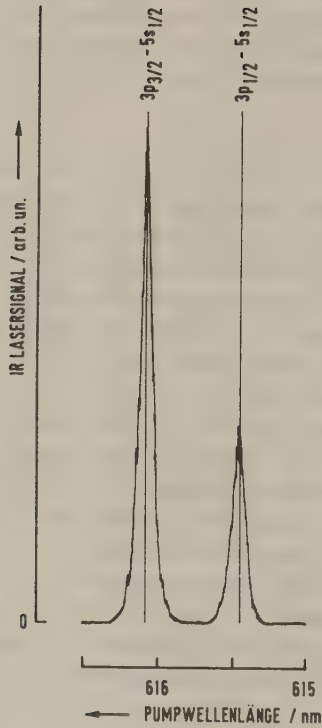


Abb. 4.14: Anregungsspektrum der wellenlängenun aufgelösten IR Lasertätigkeit für die beiden Einphotonenresonanzen bei 615.42 und 616.08 nm (Bedingungen: $l_{\text{Dampf}} = 3.4$ cm, $p_{\text{Tot}} = 11$ mbar mit $p_{\text{Na}}/p_{\text{Ar}} = 10/1$, $E_{\text{in}} = 1.0$ mJ).

● 4.1.2 IR Lasertätigkeit nach stoßinduzierter Zweistufenanregung von $5s_{1/2}$, Ergebnisse, Diskussion ●

Wie im Fall der direkten Zweiphotonenanregung beobachtet man starke IR Laseremission zwischen $5s_{1/2}$ und $4p_{3/2,1/2}$ sowie $4p_{3/2}$ und $4s_{1/2}$, wenn man die Anregung des oberen Laserzustandes $5s_{1/2}$ statt über die Zweiphotonenresonanz bei 602.23 nm über die Einphotonenresonanzen $3p_{1/2} - 5s_{1/2}$ und $3p_{3/2} - 5s_{1/2}$ bei entsprechenden Pumpwellenlängen von 615.42 und 616.08 nm vornimmt. Abb. 4.14 zeigt das IR Lasersignal in Abhängigkeit der Wellenlänge des Dylasers. Auch hier wird diese Lasertätigkeit nur dann erhalten, wenn der Pump-laser im Rahmen der durch seine Linienbreite vorgegebenen Meßgenauigkeit exakt mit diesen Einphotonenresonanzen übereinstimmt. Die eingeschränkte Durchstimmbarkeit des Dylasers (siehe Kap. 3.2) läßt dabei eine exakte Festlegung des in diesem Anregungsspektrum registrierten Intensitätsverhältnisses bei beiden Wellenlängen nicht zu (dieses Verhältnis hängt davon ab, wie gut beim Wellenlängenscan die einzelnen Moden des Lasers (siehe Abb. 2.9) mit den stoßverbreiterten $3p - 5s$ Linien übereinstimmen).

Erzielt wird diese IR Laserstrahlung über einen beobachteten Na Druckbereich von 1 bis 10 mbar, wobei wie im vorangegangenen Kapitel der benutzte gekreuzte Heatpipeofen immer unterkritisch mit einem Ar Puffergasdruck betrieben wird, der 1 mbar über dem des Na Dampfdruckes liegt (teilweise wird jedoch auch Laseremission bei unterkritischem Betrieb bis zu 1000 mbar Argon beobachtet). Die benutzte Länge des aktiven Mediums liegt bei allen vorgestellten Ergebnissen bei 3.4 cm.

Daß es sich bei dem Pumpmechanismus, der zu dieser Lasertätigkeit führt (beobachtetes Laserspektrum ähnlich dem in Abb. 4.4 dargestellten), um einen Anregungsprozeß von $5s$ handelt, bei dem 2 Photonen mit einer den $3p - 5s$ Übergängen entsprechenden Wellenlänge benötigt werden, zeigt die Abhän-

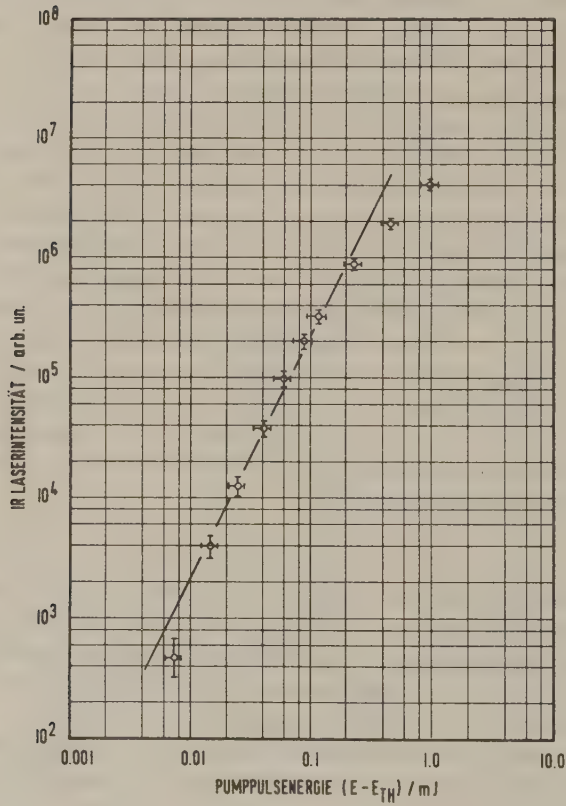


Abb. 4.15: Zeitlich integriertes IR Lasersignal ($5s_{1/2} - 4p_{3/2}$) in Abhängigkeit von der Pumppulsenergie oberhalb der Schwelle ($E_{th} = 0.01$ mJ) (Bedingungen wie in Abb. 4.14).

gigkeit des IR Lasersignals von der Pumpleistung. In Abb. 4.15 ist das zeitlich integrierte Signal des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserübergangs bei einer Na Grundzustandsdichte von $n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ in Abhängigkeit der auf die Schwellenpumpimpulsenergie (in diesem Fall $E_{th} = 0.01 \text{ mJ}$) bezogenen Pumpimpulsenergie dargestellt. Deutlich erkennt man in der doppelloarithmischen Auftragung den quadratischen Zusammenhang bei der Größen über mehrere Größenordnungen - auch hier mit einer Geraden der Steigung 2 verglichen. Es muß also von einem Zweiphotonenabsorptionsprozeß als Bevölkerungsmechanismus von 5s ausgegangen werden. In Frage kommt nur der in Kap. 3.2.3 (Gl. (3.71)) vorgeschlagene stoßinduzierte Zweistufen-Zweiphotonenpumpmechanismus: die Anregung von 3p Atomen auf den Linienflügeln der stoßverbreiterten 3s - 3p Linien im ersten Schritt, gefolgt von der resonanten Anregung der so erzeugten 3p Atome in den 5s Zustand im zweiten Schritt (siehe Abb. 3.8).

Das Studium der Zeitabhängigkeit der IR Laserpulse zeigt auch hier, daß die beobachteten Laserpulsverläufe, wie beim direkten Zweiphotonenpumpprozeß, dem Pumpimpuls im wesentlichen folgen und daß damit nach dem Erreichen der Schwelle hier ebenfalls ein stationärer Laserbetrieb möglich ist. Abb. 4.16 und 4.17 zeigen die gemessenen Pulsverläufe für zwei Grundzustandsdichten ($n_{3s} = 10^{16}$ und 10^{17} cm^{-3}) in Abhängigkeit von der absorbierten Dylaserenergie (Abschwächung durch kalibrierte Neutraldichtefilter; Abschwächungsfaktoren: 1, 2, 4, 8, 20). Bei den einzelnen gezeigten Pulsverläufen handelt es sich wieder um gemittelte Kurvenverläufe von 100 mit einer Oszillographenkamera aufgenommenen Einzelschußaufnahmen (siehe z.B. Abb. 4.16').

Die Ergebnisse lassen sich gut mit den Beobachtungen bei der direkten zweiphotonengepumpten Lasertätigkeit vergleichen: Auch hier dominiert der $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserprozeß. Er erreicht als erster Übergang die Schwelle, direkt gefolgt vom Kaskadenübergang $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$. Dann erst folgt der $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ Übergang.

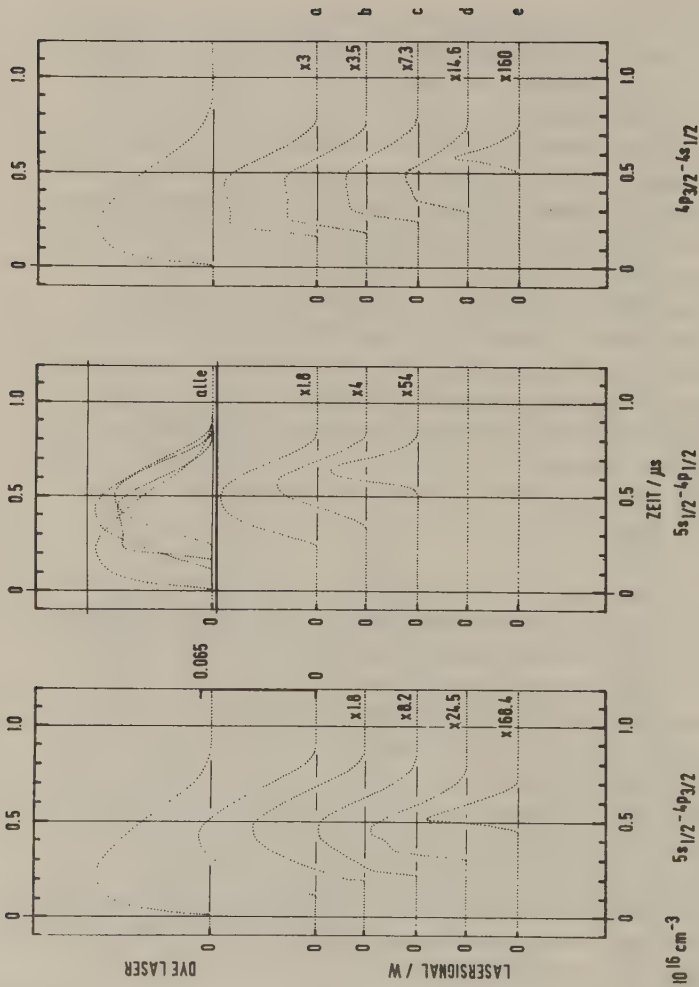


Abb. 4.16: Zeitabhängigkeit der beobachteten IR Laserpulse bei $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ für verschiedene Pumppulsennergien (Abschwächungsfaktoren: a: 1 ($\approx 1.48 \text{ mJ}$), b: 2, c: 4, d: 8, e: 20; Bedingungen: Resonator 2, $l_{\text{Dampf}} = 3.4 \text{ cm}$, $p_{\text{Tot}} = 2 \text{ mbar}$ mit $p_{\text{Na}}/p_{\text{Ar}} = 1/1$, $\lambda_{\text{in}} = 616.08 \text{ nm}$).



Abb. 4.16': Typische Oszillographenaufnahme der $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Lasertätigkeit (rechts) im Vergleich zum Pumpuls (links) (jeweils 100 Einzelschüsse).

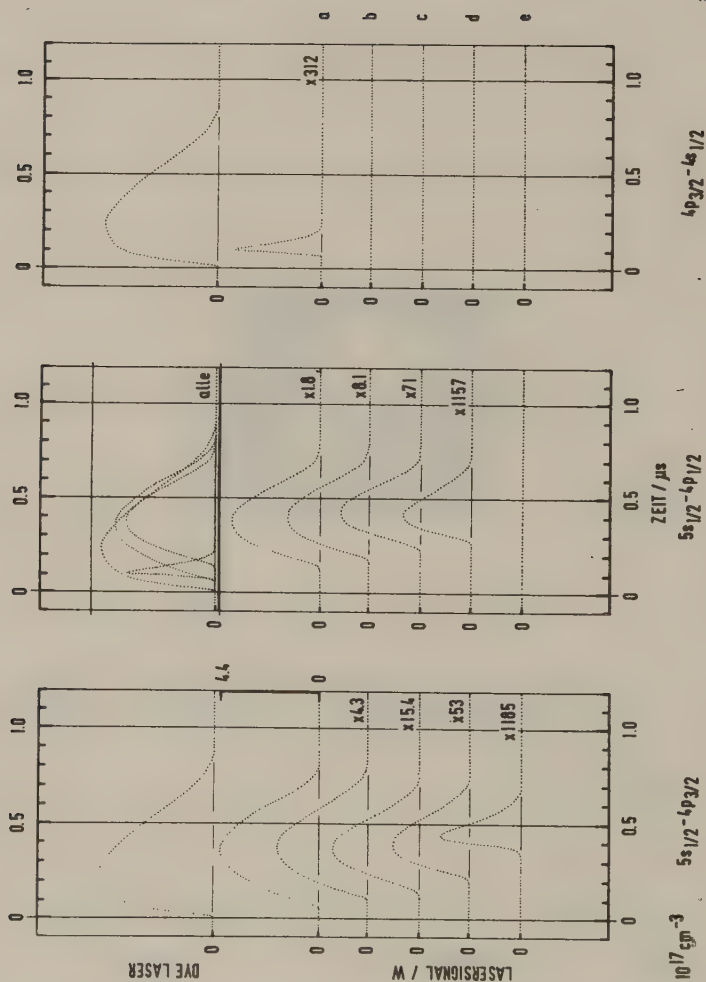


Abb. 4.17: Zeitabhängigkeit der beobachteten IR Laserpulse bei $n_{3S} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ für verschiedene Pumpenergien (Abschwächungsfaktoren: a: 1 ($\approx 1.01 \text{ mJ}$), b: 2, c: 4, d: 8, e: 20; Bedingungen: Resonator 2, $l_{\text{Dampf}} = 3.4 \text{ cm}$, $p_{\text{Tot}} = 11 \text{ mbar}$ mit $p_{\text{Na}}/p_{\text{Ar}} = 10/1$, $\lambda_{\text{in}} = 616.08 \text{ nm}$).

Der gravierende Unterschied zu den dort registrierten Pulsformen (siehe Abb. 4.6, 4.7) besteht jedoch offensichtlich in der wesentlich längeren Dauer der Pulse. Die Ursache hierfür liegt in dem in diesem Fall vorliegenden, grundsätzlich verschiedenen Anregungsmechanismus des 5s Zustandes: Die Bevölkering dieses Zustandes erfolgt im zweiten Schritt der Zweiphotonenabsorption über die Anregung von langlebigen 3p Atomen (Selbstabsorption auf dem 3s - 3p Übergang: $\tau_{\text{eff}} \approx 3.5 \times 10^{-6}$ s, siehe (3.50)). Dies sorgt auch noch dann für eine für den Laserbetrieb ausreichende Population des 5s Zustandes, wenn zu späten Zeiten des Pumpulses nur noch wenig Pumpleistung zur Verfügung steht.

Bei höherer Teilchendichte ($n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) beobachtet man wie beim direkten Zweiphotonenpumpen ebenfalls kürzere Laserpulse. Doch macht sich in diesem Fall der 'Energy Pooling'-Rückprozeß durch den direkten Anregungsschritt von 3p - 5s nicht so drastisch bemerkbar wie im Fall des resonanten Zweiphotonenpumpens von 3s - 5s, wie dort an Hand des Modells gezeigt wird (die durch diesen Zerstörungsprozeß im Stoß von 5s mit 3s gebildeten beiden 3p Atome können hier wieder am Anregungsprozeß 3p - 5s teilnehmen).

Ein weiterer Unterschied besteht in dem hier langen und intensiven $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ Laserprozeß bei kleiner Grundzustandsdichte ($n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, vergleiche Abb. 4.16 mit 4.6a). Dadurch ähneln die hier erhaltenen Intensitätsverhältnisse für die drei beobachteten Laserübergänge grob denjenigen der Modellergebnisse für den Fall des direkten Zweiphotonenpumpens (vergl. Abb. 4.8). Ursachen für den dort kurz und schwach und hier lang und intensiv beobachteten $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ Pulsverlauf müssen in einer anderen Dynamik des in diesem Fall vorliegenden Systems gesehen werden. Denkbar ist ein geringerer Einfluß von 'Radiation Trapping' auf dem 4s - 3p Übergang durch weniger starkes Pumpen des 3p Zustandes (Pumpen auf dem roten Flügel der D-Linie bei etwa 616 nm, gegenüber etwa 602 nm beim direkten Zweiphotonenpumpen).

Daß auch hier andere Prozesse auf die Lasertätigkeit Einfluß nehmen können, kann wieder durch Beobachtungen grüner 4d - 4p Fluoreszenz mit bloßem Auge vermutet werden. Diese Tatsache in Verbindung mit der Beobachtung sehr langer (im Vergleich zum Pumpimpuls) IR Fluoreszenz ausgehend vom 5s Zustand sowie von benachbarten höheren Zuständen (siehe Anhang A3: Fluoreszenzstudien) kann nicht ausschließen, daß parallel zu den Laserprozessen ablaufende Ionisations- sowie Rekombinationsprozesse in nicht einfach überschaubarer Weise in die Laserdynamik eingreifen.

Eine experimentelle Bestimmung der Konversionseffizienz für den Laserprozeß über die Messung der Absorption scheitert aus den gleichen Gründen wie beim direkten Zweiphotonenpumpen (Na_2 Absorptionslinien). Doch kann sie grob über den theoretisch bestimmbaren Absorptionskoeffizienten abgeschätzt werden. Dieser beträgt bei einer Teilchendichte von $n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ für den ersten Schritt der Zweistufenabsorption, der Absorption eines etwa 26.4 nm ($\approx 727 \text{ cm}^{-1}$) vom Linienzentrum der selbstverbreiterten D-Linie (Halbwertsbreite $\approx 2 \text{ cm}^{-1}$) eingestrahlten Photons mit einer Wellenlänge von etwa 616 nm, ungefähr $4 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$. Bei einer Dampflänge von 3.4 cm entspricht dies einer Absorption von grob 2%. Dieser Wert erhöht sich maximal auf 4%, wenn man annimmt, daß im zweiten Schritt des Pumpprozesses jedes 3p Atom in den 5s Zustand gelangt. Bei einer maximalen Pumpleistung von etwa 1.3×10^4 Watt beträgt somit die absorbierte Pumpimpulsleistung maximal etwa 54 Watt. Vergleicht man damit eine IR Ausgangsleistung von 4.4 Watt ($5s_{1/2} - 4p_{3/2}$, siehe Abb. 4.17), so erhält man als obere Grenze eine Konversion von etwa 8% (für $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ auf ähnliche Weise 2%), was sich gut mit dem maximal möglichen, theoretisch erreichbaren Wert von 9% vergleichen läßt.

Denkbar ist eine Steigerung der Ausgangsleistung durch eine entsprechende höhere Absorption des Pumplichtes (durch größere Grundzustandsdichten, längere Dampfzonen oder durch hohe Puffergasdrucke). So konnten z.B. bei einem Na Druck

von 1 mbar und einem Argon-Puffergasdruck von 1000 mbar (Linienbreite des $3s - 3p$ Übergangs durch Stöße mit Ar: $\approx 0.8 \text{ cm}^{-1}$) ähnliche $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Ausgangssignale erzielt werden wie in dem hier vorgestellten Fall von 10 mbar Na und 1 mbar Ar (Linienbreite durch Selbstverbreiterung: $\approx 2 \text{ cm}^{-1}$)

Ausgehend von einem Zweistufenabsorptionsprozeß, der wie gezeigt den Pumpmechanismus der beobachteten Laserprozesse adäquat beschreibt, sind auch die beobachteten Tendenzen im Verhältnis der Ausgangssignale für die beiden möglichen Anregungswellenlängen (siehe Abb. 4.14) verständlich: Unterschiede im Absorptionskoeffizienten auf den Linienflügeln der beiden Na D-Linien sowie ein bei den hohen Grundzustandsdichten vorliegendes totales Mischen der beiden Feinstrukturzustände des $3p$ Zustandes durch Stöße mit den Grundzustandsatomen ('j-mixing'; typ. Stoßzeiten $t = n_{3s} \cdot k \approx 10^{-8}$ mit $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ und $k \approx 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ /Hue 82/) bilden die Grundlage für eine höhere Bevölkèrung des $3p_{3/2}$ gegenüber dem $3p_{1/2}$ Zustand im ersten Schritt des Anregungsprozesses (die Anregungswahrscheinlichkeiten im zweiten Schritt für $3p_{3/2} - 5s_{1/2}$ und $3p_{1/2} - 5s_{1/2}$ sind bei gleicher eingestrahelter Pumplaserintensität bei beiden Wellenlängen gleich).

- 4.1.3 IR Lasertätigkeit ($5s_{1/2} - 4p_{3/2}$) nach 'Energy Pooling'-Pumpprozeß ●
- 4.1.3.1 Erste Experimente, Anregungs- und Transmissions-spektren ●

Wird der Dylaser auf das Zentrum oder die nahen Flügel der D-Linien abgestimmt, so beobachtet man Lasertätigkeit auf dem Übergang $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ bei einer Wellenlänge von $3.415 \text{ }\mu\text{m}$. Diese Laserstrahlung erhält man für einen brei-

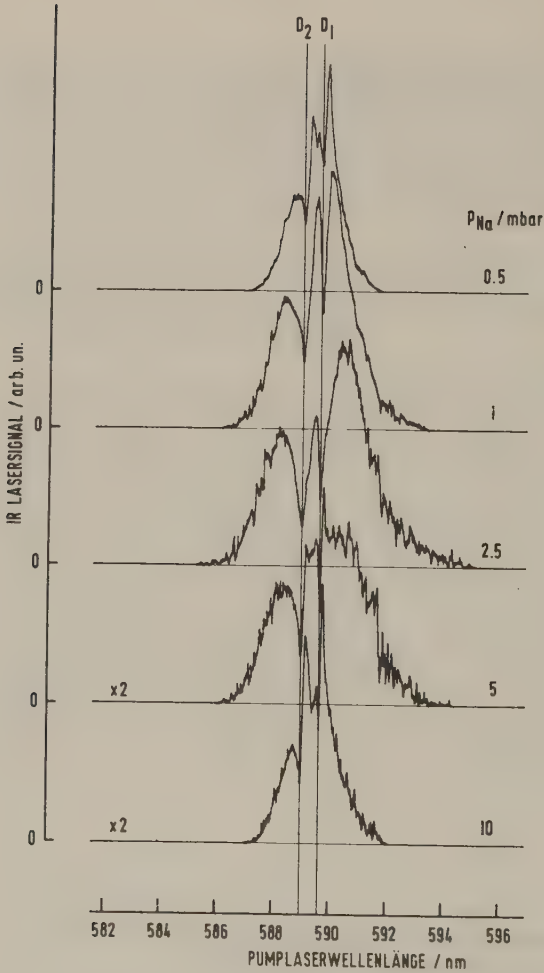


Abb. 4.18: Anregungsspektren um die Na D-Linien ($5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Lasertätigkeit) bei verschiedenen Dampfdrücken (Bedingungen: $l_{\text{Dampf}} = 3.4 \text{ cm}$, $p_{\text{Tot}} = p_{\text{Na}} + p_{\text{Ar}}$ mit $p_{\text{Ar}} = 1 \text{ mbar}$, Resonator 2, E_{in} in mJ bei $\lambda_{\text{in}} = 595 \text{ nm}$: 3 (0.5), 4.9 (1), 3.9 (2.5), 2.1 (5), 3 (10), E_{in} bei $\lambda_{\text{in}} = 585 \text{ nm}$ etwa um 37% kleiner).

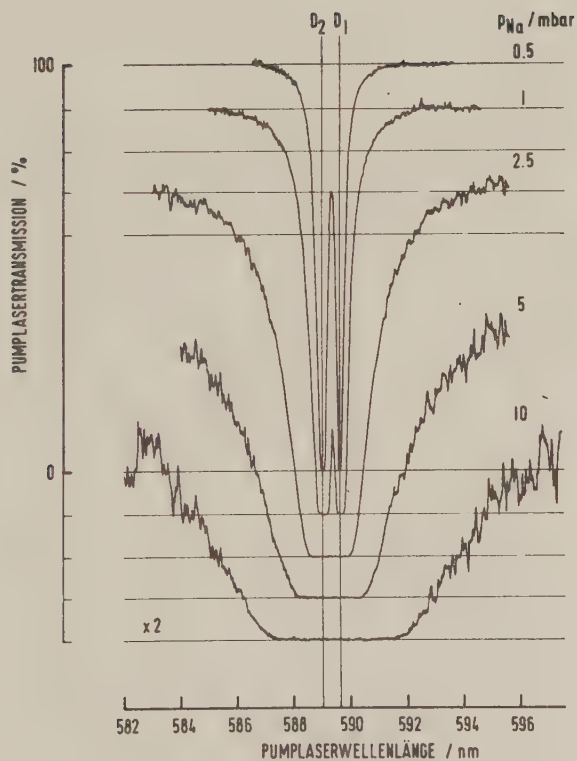


Abb. 4.19: Normierte Transmissionsspektren und die Na D-Linien bei verschiedenen Dampfdrücken (Bedingungen: wie Abb. 4.18).

ten Bereich experimenteller Bedingungen: bei Na Dichten von etwa 5×10^{13} bis $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, bei Dampfzonenlängen von einigen cm bis 30 cm (maximal verwendete Dampfzonenlänge), bei kritischem und unterkritischem Betrieb (bis zu 1000 mbar Ar als Puffergas), bei Pumpaserintensitäten von 500 bis 10^6 W/cm^2 und bei Pumpwellenlängen, die unter Umständen bis zu 15 nm entfernt vom D-Linien Zentrum liegen können.

Abb 4.18 zeigt exemplarisch für verschiedene Dampfdrucke einer 3.4 cm langen Dampfzone die Abhängigkeit des zeitlich integrierten IR Lasersignals von der Pumpwellenlänge. Die gleichzeitig mit diesen Anregungsspektren aufgenommenen Transmissionsspektren sind in Abb. 4.19 dargestellt. Dabei zeigt die Durchstimmkurve des Dylasers einen von kleinen zu großen Wellenlängen ansteigenden Verlauf (siehe Abb. 4.20, in der die tatsächliche Abhängigkeit des transmittierten Dylasersignals neben dem Anregungsspektrum für einen Dampfdruck von 1 mbar gezeigt wird; die Asymmetrie in den Anregungsspektren kommt im wesentlichen durch diese Abstimmkurve des Dylasers zustande).

Deutlich erkennt man, daß prinzipiell nur dann IR Laserstrahlung erhalten wird, wenn der Pumpaser merklich um und auf den selbstverbreiterten D-Linien absorbiert wird. Der Pumpaser kann dabei jedoch bei den hier vorgegebenen Na Dampfdrücken nur auf den Linienflügeln die 3.4 cm lange Dampfzone durchdringen. Bei exakt resonanter Einstrahlung auf den D-Linien wird er hingegen vollständig absorbiert (innerhalb der ersten mm der Dampfzone; dies kann durch Beobachtung der Anregungszone senkrecht zur optischen Achse des Laserresonators festgestellt werden; siehe auch Abschätzung der Eindringtiefe über Gl. (3.19)). Man beachte, daß mit steigendem Druck das Absorptionslinienprofil immer breiter wird (vergleiche dazu: Abhängigkeit der Äquivalenten Breite vom Druck, Kap. 3.1.3), das Profil der Anregungsspektren jedoch bei einem Druck von etwa 2.5 mbar in der Dampfzone am breitesten ist.

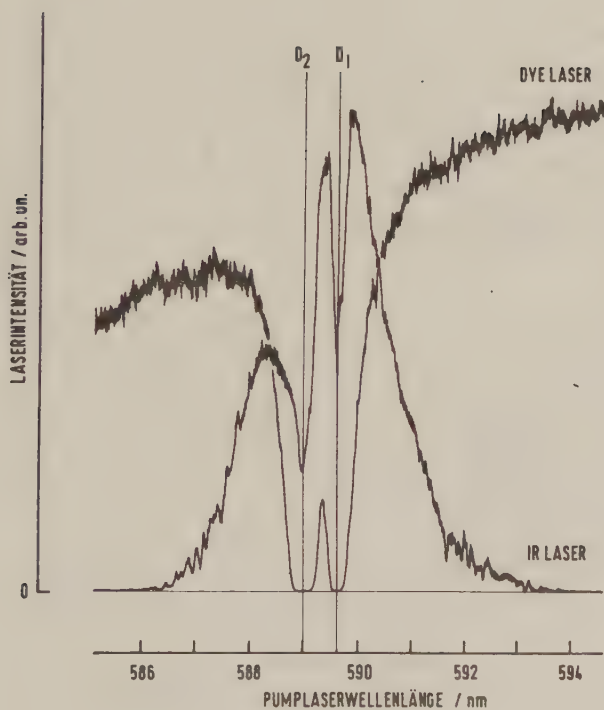


Abb. 4.20: Anregungs- und Transmissionsspektrum um Na D-Linien für einen Na Dampfdruck von 1 mbar (Bedingungen: wie Abb. 4.18).

Offensichtlich sind mit der starken Absorption auf den D-Linien die Minima in den Anregungsspektren verbunden. Das Verhalten der Absorption im näheren Bereich um die D-Linien wird dabei von starken Selbstfokussierungs- und -defokussierungseffekten begleitet, die in großem Maße von der einfallenden Pumplaserleistung, der Verstimmung des Lasers von der atomaren Übergangsfrequenz und der Dampfdichte abhängen. Sie wirken sich in einer mehr oder weniger starken Aufweitung des Pumplaserstrahls nach der Dampfzone aus ('Blooming', damit verbundene anormale nichtlineare Phänomene in Metalldämpfen siehe /Mey 80; SKI 79, BRT 82/). Dennoch wird auch noch unter solchen unüberschaubaren Bedingungen IR Laseremission registriert.

Bei vollständiger Absorption des Pumplasers wird dabei das Zustandekommen der Laserstrahlung durch die Druckbedingungen am Rande der Dampfzone - der Übergangszone - bestimmt. In diesem Teil der Dampfzone liegt keine homogene Druckverteilung mehr vor (siehe Abb. 2.7). Auffallend ist die starke Ähnlichkeit der Anregungsspektren bei 0.5 und 10 mbar, obwohl im Falle des höheren Dampfdrucks der Pumplaserstrahl im gleichen beobachteten Wellenlängenbereich vollständig absorbiert wird. Vergleicht man die gezeigten Transmissions- und Anregungsspektren bei Bedingungen gleicher Absorption und bei Wellenlängen die zu homogenen Dampfzonen führen, so bemerkt man, daß die Lasertätigkeit mit steigendem Na Druck zunehmend zum Erliegen kommt - bei einem Druck von 10 mbar sogar überhaupt nicht mehr zu beobachten ist. Deshalb muß bei dieser Ähnlichkeit davon ausgegangen werden, daß im Übergangsbereich der Dampfzone mit hohem Druck im Mittel ähnliche Druckbedingungen vorherrschen, wie in der Dampfzone mit kleinem Druck. Bei einem Druck von 10 mbar wird also die Laserstrahlung nur in der Übergangszone mit einem entsprechend niedrigeren mittleren Druck erzeugt.

Bei Drucken, die es dem Pumplaser gestatten die Dampfzone auf den D-Linien zu durchdringen (das ist hier schon

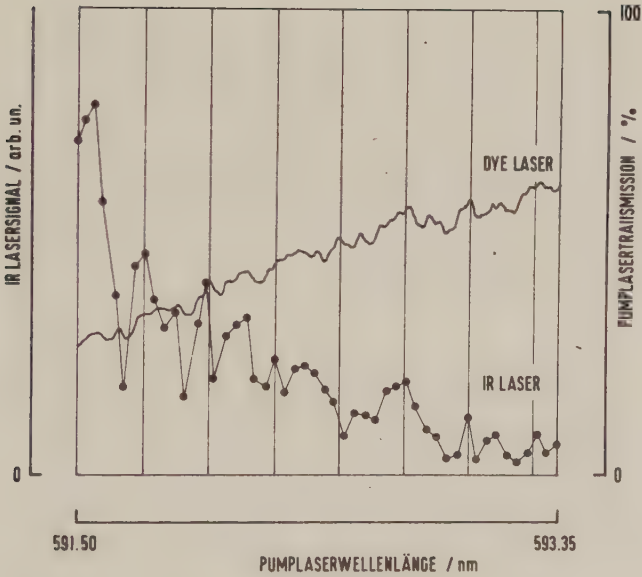


Abb. 4.21: Anregungs- und Transmissionsspektrum auf dem roten Flügel der Na D_1 -Linie (Bedingungen: $l_{\text{Dampf}} = 3.4$ cm, Resonator 2, $E_{\text{in}} = 2.1$ mJ bei $\lambda_{\text{in}} = 593.35$ nm, $p_{\text{Tot}} = 6$ mbar mit $p_{\text{Na}}/p_{\text{Ar}} = 5/1$).

bei Drucken unterhalb 0.5 mbar möglich), verschwinden die Minima in den Anregungsspektren bei Pumpwellenlängen auf den D-Linien und man erhält dort maximale IR Lasertätigkeit bei gleichzeitig homogener Ausleuchtung des gesamten Mediums durch den Pumplaser.

Neben diesen Erscheinungen sind sowohl in den Transmissions- als auch in den Anregungsspektren Linienstrukturen zu erkennen, deren Einfluß bei größer werdendem Dampfdruck zunimmt. Daß dabei Absorptionslinien in Transmissionspektren und Minima in Anregungsspektren korreliert sind, zeigt Abb. 4.21. Wie aus der beobachteten Zunahme der Absorption mit steigendem Druck vermutet werden kann, zeigt eine detaillierte Analyse der Druckabhängigkeit der Absorptionslinien, daß es sich um Absorptionslinien des Natrium-moleküls handelt (X-A Bandensystem).

Schon diese ersten Beobachtungen zeigen die wesentlich komplizierteren Verhältnisse bei der hier vorliegenden optischen Anregung im Vergleich zu den beiden in den vorhergehenden Kapiteln beschriebenen optischen Pumpmechanismen. Wichtig im Hinblick auf eine reproduzierbare Durchführung der im folgenden vorgestellten Experimente und eine vernünftige Basis für den Vergleich der dort erhaltenen Ergebnisse mit den Resultaten des in Kap 3.4.2 vorgestellten, auf 'Energy Pooling' aufbauenden Lasersmodells ist deshalb die Beachtung folgender Punkte:

- (a) die Anregung bei den gewählten hohen Drucken muß zur Erzeugung eines homogenen aktiven Mediums auf den Flügeln der D-Linien erfolgen
- (b) die Anregung bei Wellenlängen, die zusätzlich zu einer Absorption im Molekül führen, ist zu vermeiden (z.B. durch Wahl geeigneter Pumpwellenlängen oder kleiner Dampfdrucke, siehe Abb. 4.18, 19, 21)
- (c) die Anregung der Dampfzone muß unter Bedingungen durchgeführt werden, bei welchen Selbstfokussierungs- und Defokussierungseffekte auszuschließen oder zu minimie-

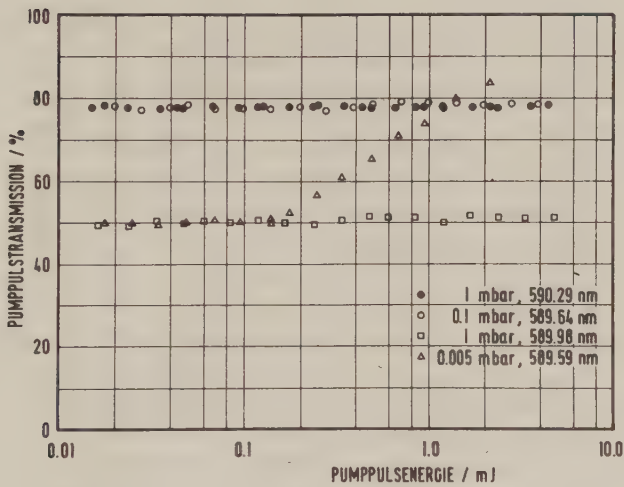


Abb. 4.22: Anhängigkeit der Transmission des Pumpulses von seiner Energie für verschiedene Drücke und unterschiedliche Anregungsbedingungen ($l_{\text{Dampf}} = 3.4 \text{ cm}$).

- ren sind (Vermeidung des Pumpens mit Wellenlängen im näheren Bereich der D-Linien bei hohen Dampfdichten)
- (d) die Absorption auf den Flügeln muß linear sein; Sättigungseffekte bei der Anregung sind zu vermeiden (siehe dazu Kap. 3.1.1 und 3.4.2.1.4; dies ist, wie die in Abb. 4.22 dargestellte Abhängigkeit der Pumpplasertransmission von der Pumpulsenergie für verschiedene Drucke und Anregungswellenlängen zeigt, meist erfüllt: Bei Anregung von Dampfzonen mit hohen Drucken auf den Flügeln der D-Linien ist die Transmission des Pump-laserpulses im benutzten Pumpulsenergiebereich konstant. Bei kleinen Na Dichten jedoch, wo eine für Lasertätigkeit notwendige, hohe Absorption nur noch auf den D-Linien erreicht werden kann, steigt sie mit steigender Pumpulsenergie. Der Übergang $3s - 3p$ wird dann bei steigender Pumpulsenergie zunehmend gesättigt und die Dampfzone wird ausgebleicht).

● 4.1.3.2 Detaillierte Untersuchung des Laserprozesses ●

Unter Berücksichtigung der im vorangegangenen Abschnitt aufgeführten praktischen Einschränkungen erweist sich für weitere Studien ein Dampfdruck von 1 mbar in der 3.4 cm langen Dampfzone als geeignete Bedingung im aktiven Medium: bei diesem Druck liegen auf dem gesamten roten Flügel der D_1 -Linie keine Sättigungseffekte vor (siehe Abb. 4.22); mögliche Einflüsse von molekularen Absorptionslinien sind hier geringer als bei höheren Drucken und bei geeigneter Wahl der Pumpwellenlänge zu vernachlässigen; Auswirkungen von Selbstfokussierungseffekten für Pumpwellenlängen, die weiter als 0.5 nm vom Zentrum der D_1 -Linie entfernt sind, spielen unter den gewählten Anregungsbedingungen keine Rolle.

- (i) Abhängigkeit des zeitlich integrierten $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$

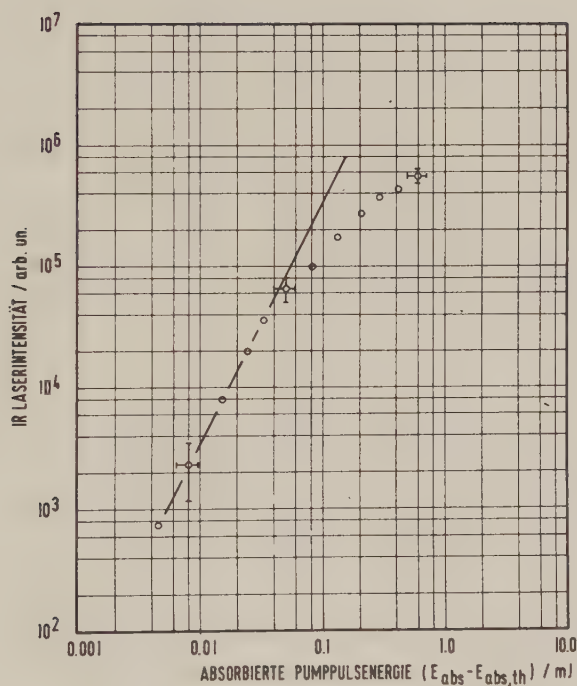


Abb. 4.23: Zeitlich integriertes IR Lasersignal ($5s_{1/2} - 4p_{3/2}$) in Abhängigkeit von der absorbierten Pump-pulsenergie oberhalb der Schwelle ($E_{abs,th} = 0.03$ mJ) (Bedingungen: $p_{Tot} = 2$ mbar mit $p_{Na}/p_{Ar} = 1/1$, $\lambda_{in} = 590.29$ nm, 22.4 % Abs., $l_{Dampf} = 3.4$ cm, Resonator 2).

Lasersignals von der absorbierten Pumpulsenergie:

Abb. 4.23 zeigt unter den obengenannten Bedingungen die Abhängigkeit des zeitlich integrierten $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Lasersignals von der absorbierten Pumpulsenergie (Absorption bei einer Pumpwellenlänge von 590.29 nm: 22.4% (dabei ist nicht nur das zeitlich integrierte Transmissions-signal unabhängig von der Pumplaserleistung, sondern auch zeitlich aufgelöst die Form des transmittierten Pulsverlaufs, die immer identisch mit dem Pulsverlauf des einfallenden Lasers ist)). Offensichtlich existiert auch hier ein quadratischer Zusammenhang zwischen beiden Größen (zumindest bei kleinen Pumpulsenergien), was auf einen Pumpmechanismus für die hier beobachtete Lasertätigkeit schließen läßt, an dem 2 auf den D-Linien eingestrahlte Photonen beteiligt sind.

Ein direkter Zweiphotonenabsorptionsprozeß von 3s nach 5s ist bei der verwendeten Wellenlänge energetisch nicht möglich (Energiediskrepanz: 735 cm^{-1} , siehe Abb. 3.1b). Eine Zweistufenanregung über die jeweiligen fernen Flügel der stoßverbreiterten 3s - 3p und 3p - 5s Übergänge ist unwahrscheinlich (siehe Kap. 3.2.3 nach Gl. (3.70)). Da offensichtlich der Laserprozeß mit der Anregung von Atomen im 3p Zustand verbunden ist (siehe Anregungsspektren im vorhergehenden Abschnitt), muß die Anregung von Atomen im 5s Zustand über den in Kap. 3.2.1 diskutierten 'Energy Pooling'-Stoßprozeß erfolgen. Da bei diesem Pumpmechanismus zwei 3p Atome 'vernichtet' werden, die von zwei mehr oder weniger resonanten Photonen erzeugt werden, muß bei einem darauf basierenden Laserprozeß ein quadratischer Zusammenhang zwischen IR Lasersignal und Pumpulsenergie bestehen.

- (ii) Abhängigkeit der IR Laserpulsform von der absorbierten Energie:

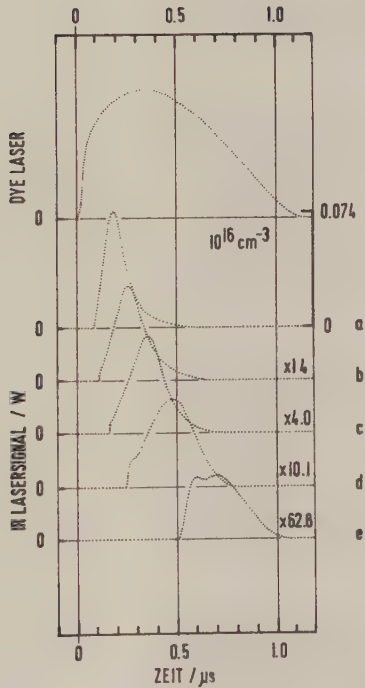


Abb. 4.24: Zeitabhängigkeit des beobachteten $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserübergangs für 5 verschiedene Pumpimpulsenergien (Bedingungen: $\lambda_{in} = 590.29 \text{ nm}$; 22.4% Absorption; $E_{abs} = 0.7 \text{ mJ}$ (a), 0.35 mJ (b), 0.175 mJ (c), 0.0875 mJ (d), 0.035 mJ (e); sonst wie Abb. 4.23).

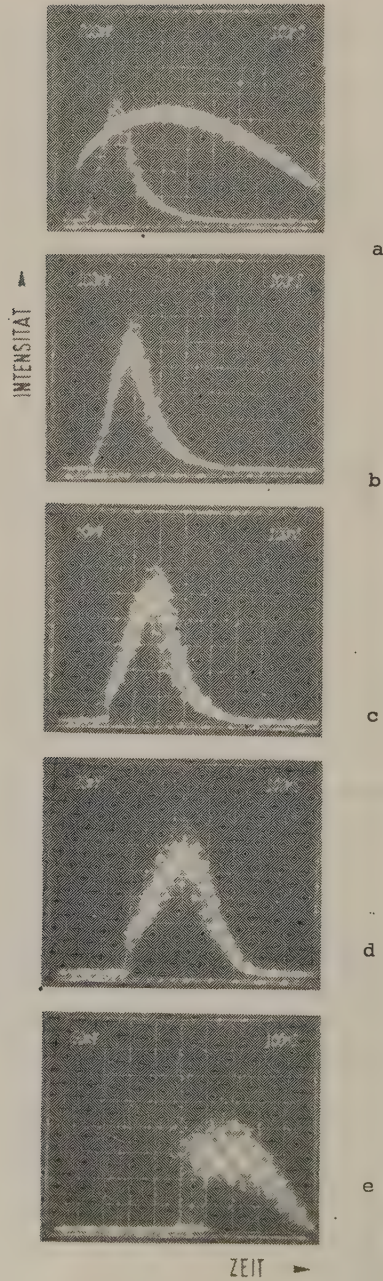


Abb. 4.24': Oszillographenaufnahmen der $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Lasertätigkeit, jeweils etwa 100 Schüsse, sonst wie Abb. 4.24).

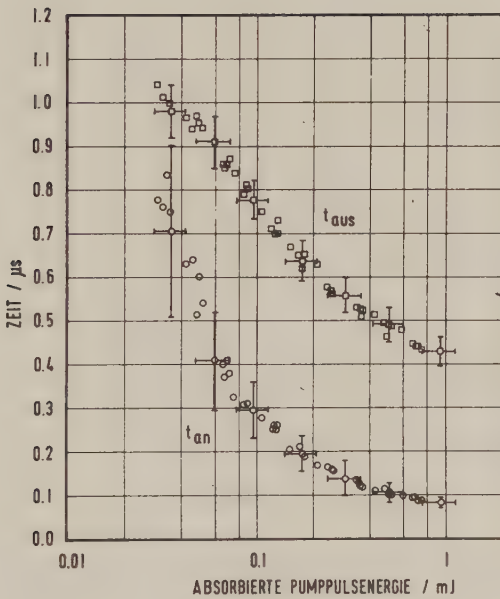


Abb. 4.25: Gemessene Einschalt- (1%, t_{an}) und Ausschaltzeiten (10%, t_{aus}) des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulses in Abhängigkeit von der absorbierten Pumpulsenergie (Bedingungen: wie Abb. 4.23).

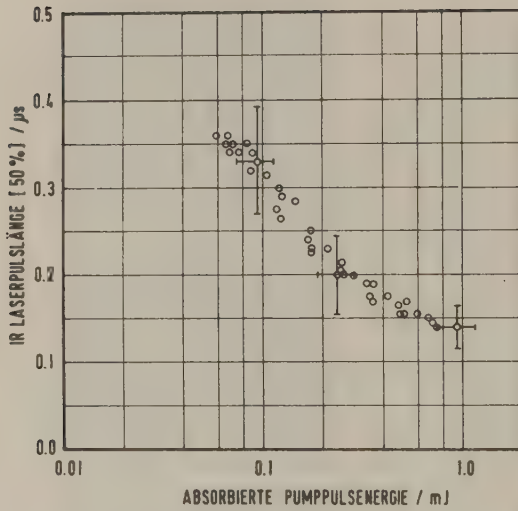


Abb. 4.26: Gemessene Pulslänge (50%) des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserübergangs in Abhängigkeit von der absorbierten Pumpulsenergie (Bedingungen: wie Abb. 4.23).

Einen tieferen Einblick in die für die Lasertätigkeit verantwortlichen Prozesse liefert die Untersuchung der Zeitabhängigkeit des IR Lasersignals. Abb.4.24 zeigt - unter gleichen Bedingungen wie oben - die Abhängigkeit des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulsverlaufs bei verschiedenen absorbierten Pumpulsenergien (wieder gemittelte Kurvenverläufe von etwa 100 mit einer Oszillographenkamera nacheinander aufgenommenen Einzelschüssen (siehe Abb. 4.24')). Deutlich erkennt man die, im Vergleich zu den in den vorhergehenden Kapiteln vorgestellten Laserprozessen doch sehr kurzen IR Laserpulse, die mit fallender Pumpulsenergie zu immer späteren Zeiten während des Pumpulses erscheinen.

In Abb. 4.25 sind zur Verdeutlichung dieses Sachverhaltes die Ein- und Ausschaltzeiten des Laserpulses in Abhängigkeit von der absorbierten Pumpulsenergie gezeigt. Da der Zeitabstand zwischen beiden Ereignissen nahezu unabhängig von der absorbierten Energie ist, sich diese beiden Zeiten grob gesehen nur zeitlich verschieben, scheinen Pulsanfang und -ende zeitlich korreliert zu sein (vergleiche dazu Ergebnisse bei der optisch direkt gepumpten Lasertätigkeit (Abb. 4.7 oder 4.15), wo dieser Abstand mit abnehmender Pumpulsenergie wie erwartet, bei gleichzeitig späterem Einsetzen und früheren Aufhören des IR Laserpulses kleiner wird). Auffallend sind auch die nahezu konstanten Schwankungen des Laserpulsendes über dem gesamten Pumpulsenergiebereich, im Gegensatz zu den mit abnehmender Pumpulsenergie immer größer werdenden Schwankungen in der Pulsanschaltzeit (bei den gezeigten Fehlerbalken handelt es sich hier, wie auch im folgenden, jeweils um die größten registrierten Schuß-zu-Schußschwankungen von etwa 100 Einzelereignissen; die doch erheblichen Amplitudenschwankungen des Pumplasers bewirken gerade beim Betrieb des IR Lasers an der Schwelle starke Fluktuationen in der Pulsanfangszeit).

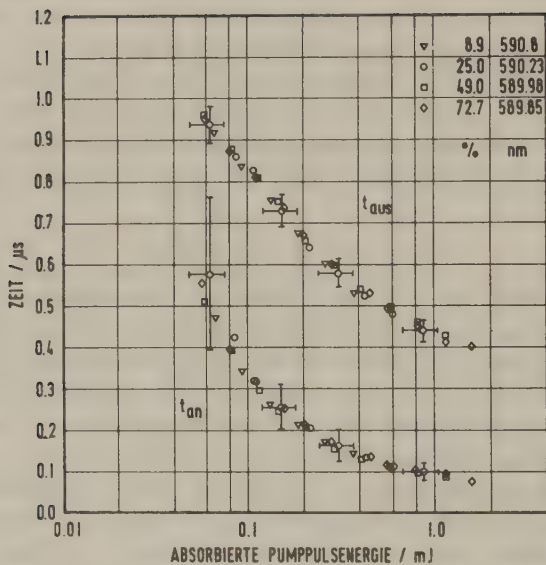


Abb. 4.27: Gemessene Einschalt- (1% , t_{an}) und Ausschaltzeiten (10% , t_{aus}) des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulses in Abhängigkeit von der absorbierten Pumpulsenergie bei verschiedenen Pumpwellenlängen auf dem roten Flügel der $Na D_1$ -Linie (% Angabe: Absorption des Pumplasers; sonstige Bedingungen: wie Abb. 4.23).

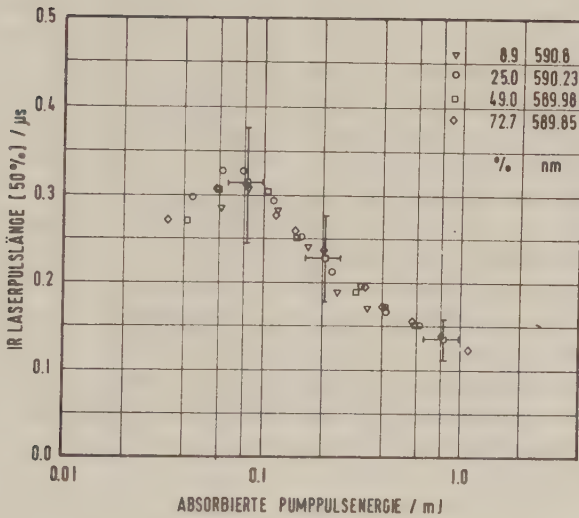


Abb. 4.28: Gemessene Pulslänge (50%) des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserübergangs in Abhängigkeit von der absorbierten Pumpulsenergie bei verschiedenen Pumpwellenlängen auf dem roten Flügel der Na D_1 -Linie (Bedingungen: wie Abb. 4.27)

In welcher Weise sich dennoch die absorbierte Pumpulsenergie auf die Pulsform - speziell die Pulslänge (FWHM) - auswirkt, zeigt Abb. 4.26. In ihr erkennt man deutlich, daß die Pulslänge mit steigender Pumpulsenergie abnimmt (um etwa 50% über den betrachteten Bereich).

Aus Abb. 4.27 und 4.28, welche die Messung von Pulseinschalt- und Pulsausschaltzeiten sowie Pulslängen (FWHM) bei verschiedenen Pumpwellenlängen (und damit verbunden: bei unterschiedlicher Absorption des Pumplasers) in Abhängigkeit von der absorbierten Pumpulsenergie zeigen, wird deutlich, daß sowohl Pulsform als auch Pulseinsatz und -ende nur von der absorbierten Pumpulsenergie und damit nur von der Dichte der durch den Pumplaser erzeugten $3p$ Atome abhängt und bei gleicher absorbierter Energie unabhängig von der Wellenlänge des Pumplasers ist. Da gleiche absorbierte Energie bei unterschiedlichen Wellenlängen verschieden hohe Pumpulsenergien erfordert, kann davon ausgegangen werden, daß innerhalb der durch Signalschwankungen vorgegebenen Unsicherheit die erhaltenen Laserpulsverläufe unabhängig von der Intensität des einfallenden Lasers sind.

(iii) Abhängigkeit der $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulsform von der Dampfdichte:

Abb 4.29 zeigt den Verlauf der beobachteten Laserpulse bei verschiedenen Na Dichten in der 3.4 cm langen Dampfzone (bei jeweils drei unterschiedlichen absorbierten Pumpulsenergien; trotz Sättigungseffekten bei resonanter Einstrahlung auf der D_1 -Linie bei den beiden niedrigsten Drucken). Offensichtlich werden die Pulse mit steigender Grundzustandsdichte kürzer. Dies wird wieder deutlicher, wenn Pulseinschalt- und -ausschaltzeit gegen die absorbierte Pumpulsenergie aufgetragen werden (siehe Abb. 4.30). Die Einschaltzeiten sind dagegen innerhalb der Meß-

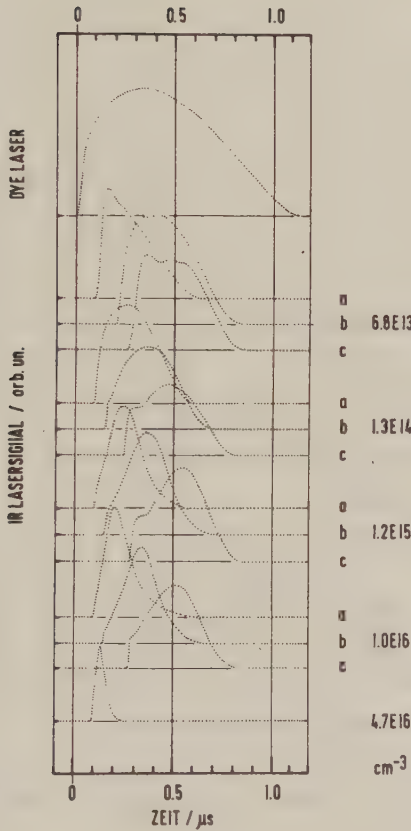


Abb. 4.29: Zeitabhängigkeit der beobachteten $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulse bei verschiedenen Na Dichten (Bedingungen: $l_{\text{Dampf}} = 3.4 \text{ cm}$, Resonator 2, $p_{\text{Tot}} = p_{\text{Na}} + p_{\text{Ar}}$ mit $p_{\text{Ar}} = 1 \text{ mbar}$).

$p_{\text{Na}}/\text{mbar}$ $n_{\text{Na}}/\text{cm}^{-3}$	0.005 6.8×10^{13}			0.01 1.3×10^{14}			0.1 1.2×10^{15}			1.0 1.0×10^{16}			5.0 4.7×10^{16}
	a	b	c	a	b	c	a	b	c	a	b	c	
$\lambda_{\text{lin}}/\text{nm}$	589.6			589.61			589.64			590.29			591.525
$\lambda_{\text{obs.}}/\text{\AA}$	29.3	76.8	82.7	32	58.5	62	19.4			22.4			72.6
$E_{\text{abs.}}/\text{mJ}$	0.776	0.256	0.155	0.748	0.245	0.103	0.72	0.25	0.081	0.67	0.237	0.075	0.45

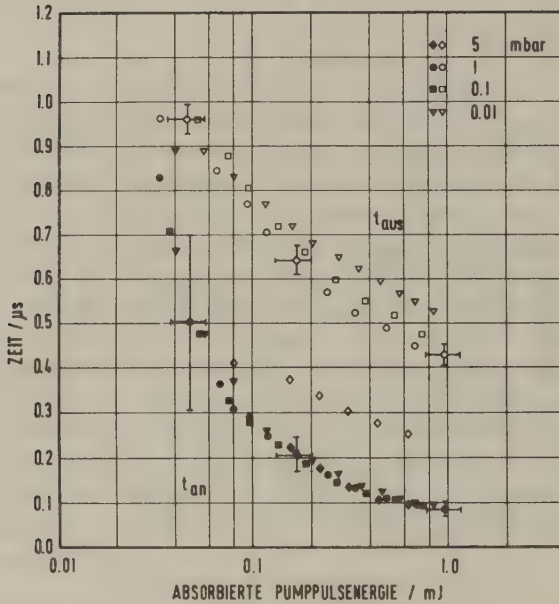


Abb. 4.30: Gemessene Einschalt- (1% , t_{an}) und Ausschaltzeiten (10% , t_{aus}) des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulses in Abhängigkeit von der absorbierten Pumpulsenergie bei verschiedenen Na Dampfdrücken (Bedingungen: 1 mbar: $\lambda_{in} = 590.29$ nm, 22.4% Abs.; 0.1 mbar: $\lambda_{in} = 589.64$ nm, 19.4% Abs.; 0.01 mbar: $\lambda_{in} = 589.57$ nm; 5 mbar: $\lambda_{in} = 591.525$ nm, 72.6% Abs.; $l_{Dampf} = 3.4$ cm, Resonator 2, $p_{Tot} = p_{Na} + p_{Ar}$ mit $p_{Ar} = 1$ mbar).

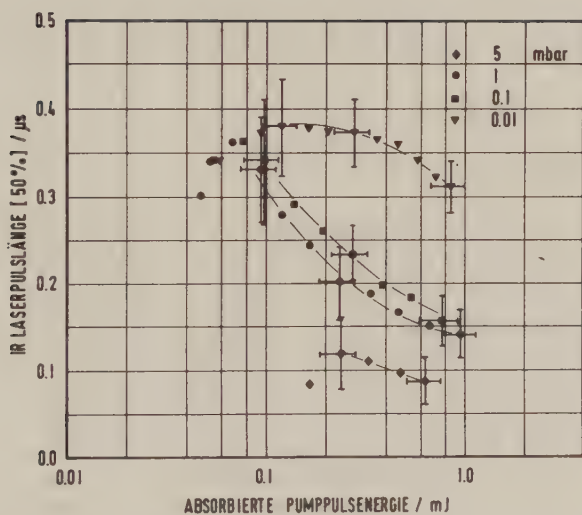


Abb. 4.31: Gemessene Pulslänge (50%) des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserübergangs in Abhängigkeit von der absorbierten Pumpulsenergie bei verschiedenen Na Dampfdrücken (Bedingungen: wie Abb. 4.30).

genauigkeit bei festgehaltener absorbiertener Pumpulsenergie für die betrachteten Na Dichten gleich. Der Beginn der Lasertätigkeit sollte also in erster Linie nur von der Dichte der durch den Pumplaser erzeugten $3p$ Atome abhängen. Sehr gut erkennt man den Effekt der Grundzustandsdichte auf die Pulslänge in Abb. 4.31 (daß die Pulslängen bei kleinen absorbierten Pumpulsenergien wieder kürzer werden, liegt an der Länge des Pumplaserpulses und an den starken Schwankungen des Pulseinsatzes bei kleinen Pumpulsenergien; siehe dazu Abb. 4.24'; unter diesen Umständen werden dann auch die Laserpulse bei allen Dampfdichten gleich lang).

(iv) Andere beobachtete Laserübergänge:

Unter den zu Anfang dieses Abschnitts erläuterten Bedingungen (1 mbar Dampfzone, Anregung auf dem roten Flügel der D_1 -Linie zur Erzeugung eines homogenen aktiven Mediums) wird nur Laserstrahlung auf dem $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Übergang beobachtet. Wählt man kleinere Dampfdrucke, bei welchen dann jedoch zur ausreichenden Absorption resonant auf den D-Linien angeregt werden muß, so beobachtet man außerdem schwache Lasertätigkeit auf dem Konkurrenzübergang $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ und auf dem Kaskadenübergang $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ (siehe Abb. 4.32). In diesem Fall liegen dann ähnliche Verhältnisse vor wie bei der zweiphotonengepumpten Lasertätigkeit (siehe vorhergehende Kapitel), mit der Ausnahme, daß die Pulse wesentlich früher enden. Das zusätzliche Erscheinen der beiden anderen Laserübergänge bei kleineren Drucken scheint dabei mit den unter diesen Bedingungen möglichen, längeren Laserprozessen (siehe (iii)) verbunden zu sein. Andere Laserübergänge im Infraroten werden nicht registriert.

Wesentliche Ergebnisse dieser Studien sind:

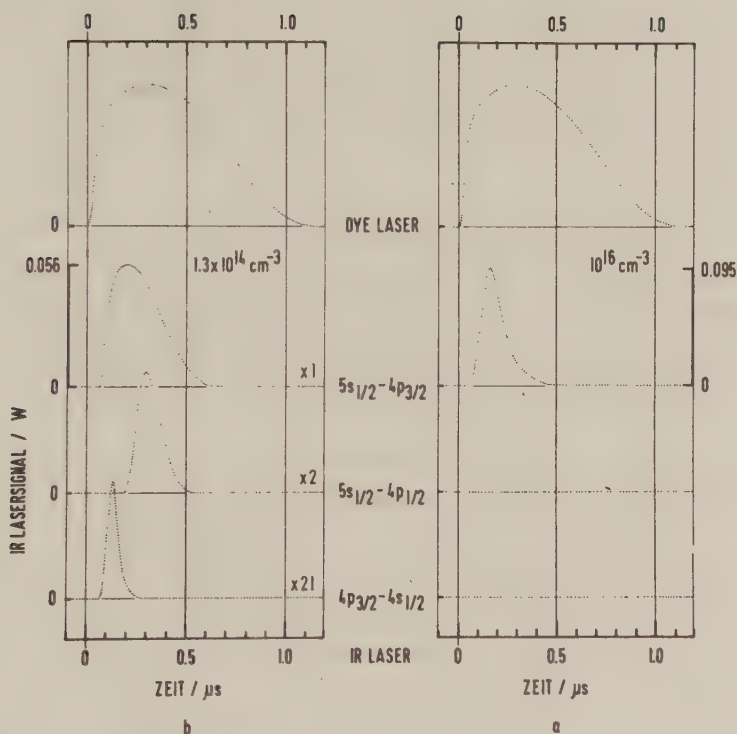


Abb. 4.32: Zeitabhängigkeit der beobachteten Laserübergänge

(a): hohe Grundzustandsdichte ($\lambda_{in} = 590.29 \text{ nm}$, 22.4% Abs., $E_{abs} = 0.9 \text{ mJ}$)

(b): niedrige Grundzustandsdichte ($\lambda_{in} = 589.61 \text{ nm}$, 30% Abs., $E_{abs} = 0.9 \text{ mJ}$)

(sonstige Bedingungen: $l_{Dampf} = 3.4 \text{ cm}$, Resonator 2).

- (a) der $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserprozeß basiert primär auf der Anregung von $3p$ Atomen (Lasertätigkeit nur bei merklicher Absorption um Na D-Linien, zeitliches Einsetzen der Lasertätigkeit nur von absorbierte Pumpulsenergie abhängig - unabhängig von Pumpwellenlänge und Grundzustandsdichte)
- (b) bei dem Bevölkerungsmechanismus des oberen Laserzustandes handelt es sich dann um den auf diesem primären Anregungsprozeß aufbauenden 'Energy Pooling'- Stoßprozeß, bei welchem zwei $3p$ Atome und damit zwei Pumpulaserphotonen benötigt werden (quadratische Abhängigkeit des zeitlich integrierten IR Lasersignals von der absorbierten Pumpulsenergie)
- (c) bei der hier beobachteten Lasertätigkeit muß, wie bei den beiden in den vorhergehenden Kapiteln betrachteten Laserprozessen, davon ausgegangen werden, daß es sich um quasistationären Laserbetrieb handelt (vergleiche die Ergebnisse der auf stoßinduziertem Zweiphotonenpumpen basierenden Lasertätigkeit des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Übergangs mit den hier erzielten Resultaten im Hinblick auf die maximale Ausgangsleistung - beide sind bei gleicher Dampfdichte etwa gleich). Im Vergleich mit den dort beobachteten langen Laserpulsen, ist das hier beobachtete frühe Abbrechen der Laserpulse also keinesfalls durch Einschwingvorgänge im Laserbetrieb zu erklären. Dafür spricht auch die Variation der Ausgangsleistung über 3 Größenordnungen bei entsprechender Variation der absorbierten Pumpulsenergie über 2 Zehnerpotenzen (siehe Abb. 4.23)
- (d) das frühe Ende des Laserpulses muß also von einem zu späteren Zeiten während des Anregungsprozesses dominierenden Zerstörungsmechanismus herrühren, der die Besetzungsinversion zwischen $5s_{1/2}$ und $4p_{3/2}$ abbaut

- (e) dieser Zerstörungsprozeß muß ebenfalls von der Dichte der primär erzeugten $3p$ Atome abhängen (gleichzeitiges Verrücken von Pulseinsatz und Pulsende bei Variation der absorbierten Pumpimpulsenergie bei festem Druck), aber auch von der Grundzustandsdichte (kürzer werden die Pulse mit steigender Grundzustandsdichte). Bei hoher Dichte bestimmt nur noch dieser Prozeß das Geschehen im Dampf. Unter solchen Bedingungen kann dann keine Laserstrahlung mehr beobachtet werden.
- (f) die Beobachtung von Lasertätigkeit ausschließlich auf dem $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Übergang bei höheren Drucken (der Konkurrenzlaserprozeß $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ sowie der Kaskadenübergang $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ werden unter solchen Umständen nicht beobachtet) läßt auf Einflüsse des Zerstörungsprozesses schon während des Laserprozesses selbst schließen
- (g) offensichtlich handelt es sich bei den bestehenden Zerstörungsprozessen um die in Kap. 3.3 diskutierten Ionisationsmechanismen, die wie der 'Energy Pooling'-Pump-prozeß auf der hohen Dichte der durch den Pump-laser erzeugten $3p$ Atome basieren.

4.1.3.3 Modellergebnisse

Abb. 4.33 zeigt das Ergebnis des in Kap. 3.4.2.1 vorgestellten Lasermodells, das auf dem 'Energy Pooling'-Stoß-prozeß als Pumpmechanismus aufbaut (dabei handelt es sich um die in Tab. 3.6 beschriebene Modellversion 4, die neben Pumpen von $5s$ und $4d$ durch 'Energy Pooling', Strahlungsrelaxation durch spontane Emission, 'Radiation Trapping' auf dem $3p - 3s$ Übergang, 'j-mixing'-Stöße innerhalb $3p_{1/2,3/2}$, $4p_{1/2,3/2}$ und $4d_{3/2,5/2}$ und mögliche Laserübergänge $5s_{1/2} - 4p_{3/2,1/2}$ und $4p_{3/2,1/2} - 4s_{1/2}$ beinhaltet).

Die darin gezeigten Pulsformen wurden für eine Na

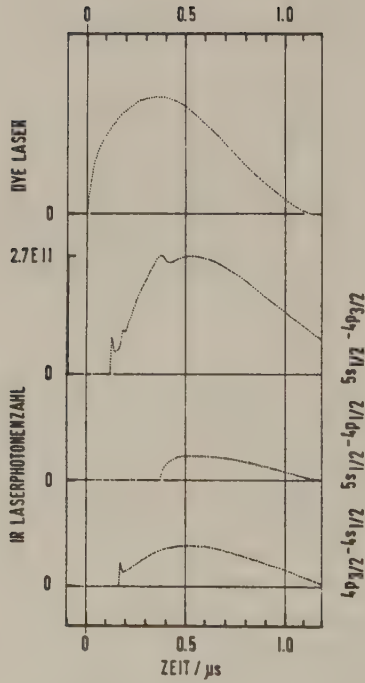


Abb. 4.33: Berechnete IR Laserpulsformen der Übergänge $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$, $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$, und $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ (Modellversion 3, siehe Tab. 3.6; Bedingungen: $l_{\text{Dampf}} = 3.4 \text{ cm}$, $n_{\text{Na}} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, $E_{\text{abs}} = 0.35 \text{ mJ}$, $K_{\text{Fit}} = 0.035 \text{ K}$).

Grundzustandsdichte von $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, einer Länge des aktiven Mediums von $l_a = 3.4 \text{ cm}$ und einer absorbierten Pumpenergiedichte $E_{\text{abs}} = 0.3 \text{ mJ}$ berechnet. Die Integrationsschrittweite und die Resonatorverweilzeit sind die gleichen wie die im Fall der auf Zweiphotonenpumpen aufbauenden Lasermode (siehe Kap. 4.1.1.2). Als Fitparameter wird hier, wie in Kap 3.4.2.1.3 dargelegt, die Rate für stimulierte Emission K_{Fit} benutzt. Geht man von den in Tab. 3.3 angegebenen Werten von K als Richtwert dieser Größe aus, so gibt man den Fitparameter zweckmäßigerweise als Vielfaches dieser Werte an. Für die verschiedenen Übergänge wird der gleiche Multiplikationsfaktor benutzt. Die Anpassung der berechneten Pulsform an die beobachtete wird so vorgenommen, daß die Pulseinsatzzeiten in beiden Fällen übereinstimmen. Dies ist bei den gewählten Bedingungen für einen Wert $K_{\text{Fit}} = 0.035 K$ der Fall. Die Ausgangsleistungen lassen sich wieder mit Gl. (4.1) aus der angegebenen Anzahl der IR Laserphotonen im Resonator berechnen.

Vergleicht man die hier erhaltenen Ergebnisse mit den Modellergebnissen im Fall des Zweiphotonenpumpens (soweit man das bei der unterschiedlichen Laserdynamik und den verschiedenen vorausgesetzten Bedingungen kann), so ähneln die hier erhaltenen Pulsformen sehr den dort erhaltenen. Vor allem lassen sich tendenziell die Pulseinsatzzeiten und die Verhältnisse der Ausgangsleistungen der einzelnen Laserübergänge gut vergleichen. Wie erwartet dauern hier im Modell jedoch die Laserprozesse wegen 'Radiation Trapping' auf den D-Linien länger an (effektive Lebensdauer der 3p Atome: etwa $3.5 \mu\text{s}$; siehe (3.50)).

Einzelheiten der Laserprozesse, wie verschiedene Einsatzzeiten der verschiedenen Laserübergänge oder beobachtete Strukturen in den Pulsverläufen, lassen sich ähnlich wie beim Zweiphotonenpumpen diskutieren und sollen deshalb hier nicht wiederholt werden.

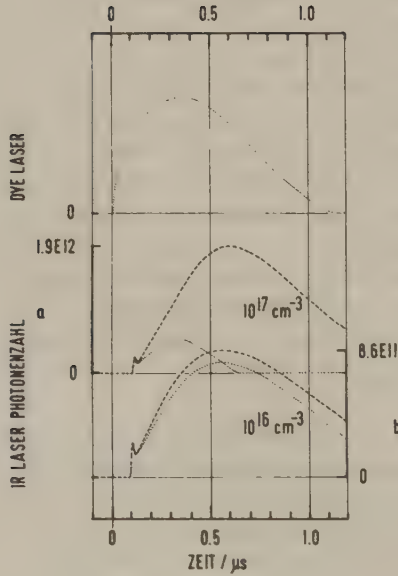


Abb. 4.34: Vergleich der berechneten $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulsform ohne (----, Modellversion 3) und mit 'Energy Pooling'-Rückprozeß (-----, Modellversion 4) für zwei verschiedene Grundzustandsdichten (a: $n_{3S} = 10^{17} cm^{-3}$, b: $n_{3S} = 10^{16} cm^{-3}$; sonstige Bedingungen: $l_{Dampf} = 3.4 cm$, $E_{abs} = 0.7 mJ$, $K_{Fit} = 0.035 K$).

Genauso verhält es sich mit der Berücksichtigung anderer möglicher Prozesse, die die Lasertätigkeit beeinflussen können (Assoziative Ionisation, Photoionisation, 'Radiation Trapping' auf dem Übergang $4p - 4s$ spielen wie dort als mögliche Zerstörungsmechanismen von Besetzungsinversionen keine merkliche Rolle; bemerkt werden soll, daß mögliches 'Trapping' der Fluoreszenz von $5s$ nach $3p$ (stark bevölkert) die effektive Lebensdauer des $5s$ Zustandes erhöht und damit positiv in den primären Laserprozeß $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ eingreift (siehe z.B. Gl. (3.101)); Strahlungseinfang auf dem Übergang $4s - 3p$ hingegen kann durch eine effektive Verlängerung der Lebensdauer des $4s$ Zustandes den sekundären Kaskadenübergang $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ stark beeinträchtigen).

Diese Prozesse können nicht die Diskrepanz zwischen Modellergebnissen und experimentellen Ergebnissen erklären:

- Modell : sehr lange Pulse ($5s_{1/2} - 4p_{3/2}$, $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$, $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$)
- Experiment: sehr kurzer Puls (nur $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$)

Selbst der bei großen Teilchendichten sehr effiziente in umgekehrter Richtung zum 'Energy Pooling'-Pumpmechanismus ablaufende Stoßprozeß (siehe Ende Kap. 3.2.1) kann, wie aus Abb. 4.34 ersichtlich, dies nicht leisten, obwohl sein Einfluß auf den Laserprozeß tendenziell mit der experimentell gemachten Beobachtung übereinstimmt (kürzer werdende Pulse mit steigendem Druck). Bei einer Grundzustandsdichte von $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ist aber auch er als möglicher, die Besetzungsinversion zwischen $5s$ und $4p$ abbauender Prozeß zu vernachlässigen.

Als relevante Zerstörungsprozesse können also nur die komplex ablaufenden Ionisationsmechanismen (siehe Kap. 3.3) in dem angeregten Dampf angesehen werden, die jedoch wegen der Vielschichtigkeit der damit verbundenen dynamischen

Prozesse, aus schon genannten Gründen (siehe Kap. 3.4.2.1.5), nicht im Modell berücksichtigt werden.

Wie gut das Modell den beobachteten $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserprozeß in der Anfangsphase des Anregungsprozesses beschreibt, in der zunächst einmal davon ausgegangen werden soll, daß die zur Ionisation führenden Mechanismen noch keine entscheidende Rolle spielen, zeigt Abb. 4.35. Darin ist die Abhängigkeit des berechneten $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Pulsverlaufs von der absorbierten Pumpulsenergie dargestellt, direkt vergleichbar mit den experimentellen Resultaten (siehe Abb. 4.24). Dies wird besonders deutlich wenn man, wie in Abb. 4.36, berechnete und experimentelle Pulseinsatzzeiten gemeinsam gegen die absorbierte Pumpulsenergie aufträgt. Zur Anpassung der berechneten Einsatzzeiten muß dabei eine Rate für stimulierte Emission von 0.035 K ($K_{5s_{1/2} - 4p_{3/2}}$: siehe Tab. 3.3) gewählt werden. Lediglich bei kleinen Pumpulsenergien, im Bereich der Schwelle, existieren größere Abweichungen, die im wesentlichen auf den experimentellen Schwierigkeiten basieren, die unter diesen Bedingungen vernünftige Aussagen nicht zulassen (Einfluß von statistischen Amplitudenfluktuationen (etwa $\pm 10\%$), räumlichen Schuß-zu-Schußschwankungen des Pumplasers (siehe auch Kap. 2.2), Inhomogenitäten der Dampfzone). Konsequenz dieser Schwierigkeiten ist, daß die Schwelle experimentell höher liegt als in den Berechnungen.

Man beachte auch hier (Abb. 4.35) wieder die deutlichen Relaxationsschwingungen zu Anfang der Laserprozesse, wie sie im Experiment (Abb. 4.24), bedingt durch die Ansprechzeit des IR Detektors von etwa 50 ns sowie die Mitteilung über 100 Schüsse nur andeutungsweise zu erkennen sind (auch dies ein Indiz, daß es sich bei der beobachteten Lasertätigkeit tatsächlich um einen nach anfänglichem Einschwingvorgang quasistationären Laserbetrieb handeln muß).

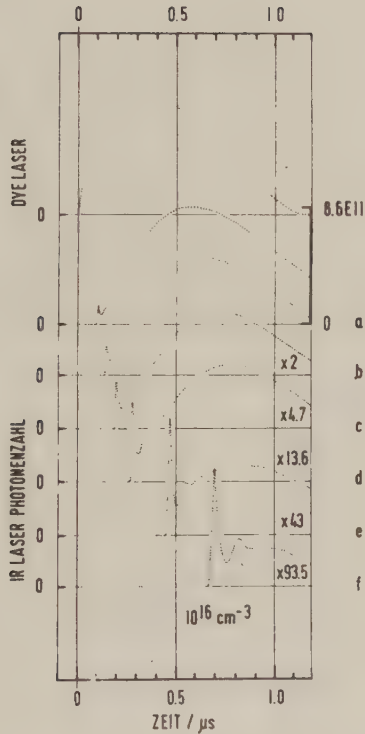


Abb. 4.35: Abhängigkeit der berechneten $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulsform von der absorbierten Pumpimpulsenergie (E_{abs} : 0.7 mJ (a), 0.35 mJ (b), 0.175 mJ (c), 0.0875 mJ (d), 0.035 mJ (e), 0.020 mJ (f); Bedingungen: $l_{\text{Dampf}} = 3.4$ cm, $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, $K_{\text{Fit}} = 0.035$ K, Modellversion 1 ohne $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserübergang).

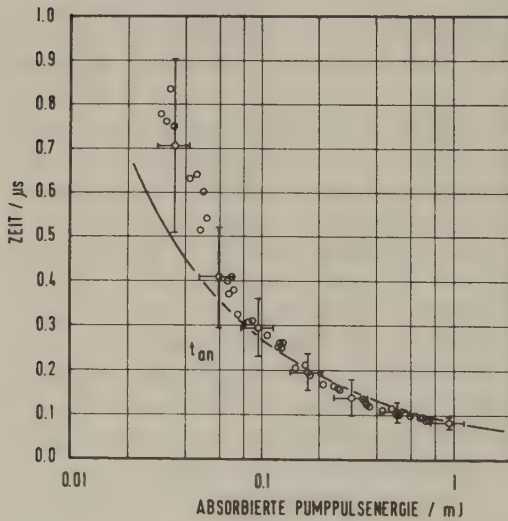


Abb. 4.36: Abhängigkeit der berechneten Einsatzzeit (t_{an}) des $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulses von der absorbierten Pumpulsenergie (durchgezogene Kurve) im Vergleich zu den experimentell beobachteten (Meßpunkte mit Fehlerbalken, wie Abb. 4.24) (Bedingungen: $l_{Dampf} = 3.4 \text{ cm}$, $n_{3S} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, Anpassung von Modell an Experiment bei $E_{abs} = 0.175 \text{ mJ}$ liefert $K_{Fit} = 0.035 \text{ K}$).

Obwohl also das Modell das Einsetzen der Lasertätigkeit gut beschreibt - also davon ausgegangen werden kann, daß 'Energy Pooling' tatsächlich der selektive Anregungsmechanismus von $5s$ ist, der zur Lasertätigkeit zwischen $5s_{1/2}$ und $4p_{3/2}$ führt -, muß jedoch beachtet werden, daß diese Ergebnisse für einen Wert der Rate für stimulierte Emission erhalten werden, der etwa um einen Faktor 28.6 kleiner ist als der in Tab. 3.3 angegebene ($K = 0.133 \text{ s}^{-1}$ für den $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Übergang mit TEM_{00} Modevolumen $V = 9.54 \text{ cm}^3$ bei 3 mm angenommener Strahltaille im Resonator, dopplerverbreitertes Linienprofil für den $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Übergang). Geht man davon aus, daß mit dem dort angegebenen Wert trotz vereinfachender Annahmen in den Modellen die Übereinstimmung zwischen experimentellen und berechneten Ergebnissen im Fall der zweiphotonengepumpten Lasertätigkeit zufriedenstellend ist (siehe Kap. 4.1.1.2) und berücksichtigt man die Tatsache, daß K stellvertretend für die Schwellenbesetzungsinversion Δn_{th} in den auf 'Energy Pooling' basierenden Lasernmodellen als Fitparameter benutzt wird (siehe Gl. (3.102) und Kap. 3.4.2.1.3), so wird deutlich: Bei sinnvoll angenommenen Werten der Größen, aus welchen sich Δn_{th} zusammensetzt (also K aus Tab. 3.6, τ_c nur durch Auskoppelverluste bestimmt, Modematching (Querschnittsfläche von aktivem Volumen V_a und Modevolumen V gleich), Länge des aktiven Mediums bekannt) bedeutet ein zu kleiner Fitwert für K und damit ein zu großer Wert für Δn_{th} , daß im Experiment ein zusätzlicher Verlustmechanismus präsent sein muß, der in den Modellen unberücksichtigt bleibt.

Schon in der Anfangsphase müssen also Besetzungsinversion abbauende Mechanismen in die Laserdynamik eingreifen, die ebenfalls auf den parallel zum 'Energy Pooling'-Pump-prozeß ablaufenden Ionisationsprozessen im aktiven Medium basieren.

Da diese Ionisationsmechanismen mit fortschreitender Zeit

während des Anregungsprozesses in immer stärker werdendem Maße die dominierende Rolle im Dampf übernehmen - bis hin zu vollständiger Zerstörung der Besetzungsinversion -, wird dann auch die Diskrepanz zwischen berechneter und gemessener maximaler Ausgangsleistung verständlich (bei $E_{\text{abs}} = 0.7 \text{ mJ}$: Modell: 8.6×10^{11} Laserphotonen im Resonator entsprechen nach (4.1) etwa 6.75 Watt; Experiment: 0.074 Watt). Auch das Fehlen anderer Laserübergänge ($5s_{1/2} - 4p_{1/2}$, $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$) im Experiment muß damit zusammenhängen.

In diesem Zusammenhang sei erwähnt, daß sich beim Mitbeziehen der ebenfalls möglichen Laserübergänge $4d - 4p$ im Lasermodell (siehe Version 5, Tab. 3.6), wie erwartet (siehe Diskussion Ende Kap. 3.4.1), zeigt, daß diese in der Konkurrenz mit den Übergängen $5s - 4p$ keine bedeutende Rolle spielen. Lediglich der Übergang $4p_{3/2} - 4p_{1/2}$ tritt vor und zu Beginn der $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ Lasertätigkeit für kurze Zeit (etwa 50 ns) in Erscheinung (im Experiment wird keiner der $4d - 4p$ Übergänge beobachtet).

● 4.1.3.4 Ionisation, Diskussion ●

Daß tatsächlich Ionisationsmechanismen während des Anregungsprozesses durch den Pumplaser im Dampf präsent sind, zeigen folgende Experimente:

(i) Die direkte Messung der Ionisation mit einer Probe:

Dazu werden unter den gleichen Bedingungen wie im Laserbetrieb ($n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, $\lambda_{\text{in}} = 590.29 \text{ nm}$, Länge der Dampfzone: 3.4 cm) die entlang des Laserstrahles in der Dampfzone gebildeten Ionen durch ein elektrisches Feld aufgesammelt, das von einer Spannung von 9 V erzeugt wird, welche zwischen einer sich längs der Anregungszone befindenden stabförmigen Elektrode (Durchmesser: 3 mm, Abstand zur optischen Achse: 5 mm) und der Wandung des Heatpipeofens liegt. Gemessen wird das Ionisa-

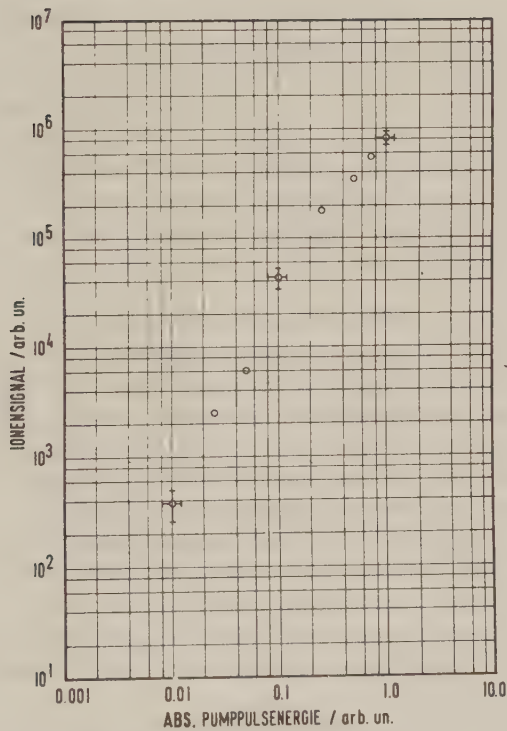


Abb. 4.37: Abhängigkeit des gemessenen Ionensignals von der absorbierten Pumpschwellenenergie (Bedingungen: $p_{\text{Tot}} = 2 \text{ mbar}$ mit $p_{\text{Na}}/p_{\text{Ar}} = 1/1$, $l_{\text{Dampf}} = 3.4 \text{ cm}$, $\lambda_{\text{in}} = 590.29 \text{ nm}$, 22.4% Abs., Boxcargate: 400 μs).

tionssignal mit dem Boxcar Integrator (direkte Messung des mittleren Ionenstroms mit einem Keithley Elektrometer erlaubt eine absolute Kalibrierung). Ohne Na Dampf wird kein Signal registriert.

Abb. 4.37 zeigt die Abhängigkeit des Ionisationssignals von der absorbierten Pumpulsenergie. Sie ist quadratisch. Bei einer absorbierten Pumpulsenergie von 1 mJ mißt man absolut etwa 1.93×10^{13} Ionen pro Puls. Bei einem Anregungsvolumen von $V_a \approx 0.24 \text{ cm}^3$ entspricht dies einer Elektronendichte von $n_e \approx 8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. Es muß also unter diesen Umständen bei einer Grundzustandsdichte von $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ von einer 0.8 %igen Ionisation ausgegangen werden.

Man beachte, daß es sich dabei um den totalen, während des gesamten Pumpulsverlaufs zustandekommenden Ionisationsgrad handelt. Über die vorherrschenden Elektronen- und Ionendichten zu bestimmten Zeiten kann dagegen nichts ausgesagt werden. Da davon ausgegangen werden muß, daß prinzipiell nicht alle gebildeten Ionen durch das elektrische Feld abgezogen werden (mehr oder weniger stark erzeugtes Plasma verhindert das Eindringen des elektrischen Feldes; nur periphere gebildete Ionen werden nach und nach abgesaugt; mögliche Rekombination), handelt es sich bei dem angegebenen Ionisationssignal um einen nach unten abgeschätzten Wert.

(ii) Das Studium der IR Fluoreszenz höherer Zustände:

Detaillierte Beschreibung: siehe im Anhang A3.

wesentliche Resultate:

- Fluoreszenz von Zuständen, die höher als die hauptsächlich durch den 'Energy Pooling'-Prozeß bevölkerten Zustände 5s, 4d liegen, während des Pumpulaserpulses, deren Bevölkерung nur durch Elektronenstoßprozesse erklärt werden kann

- langsam abfallender Fluoreszenzverlauf aller beobachteter Übergänge nach Ende des Pumplaserpulses, der nur über langsame Bevölkering aller Zustände durch Rekombinationsprozesse nach Bildung eines Plasmas und Kaskadenfluoreszenz von längerlebigen noch höher liegenden Zuständen erklärt werden kann.

Weitere Hinweise auf Ionisationsprozesse existieren durch die Beobachtung von:

- (iii) kleineren Lasersignalen (zeitlich integriert), wenn der Pumplaser auf dem Linienflügel der D_1 -Linie auf Absorptionslinien des Moleküls abgestimmt wird (siehe Abb. 4.21; im Rahmen der Schwankungen von Pulsbeginn und Pulsende läßt sich keine Aussage über die Veränderung der Pulsform treffen). Da dann durch höhere Absorption die effektive Zahl der angeregten Teilchen erhöht wird (neben angeregten Atomen im $3p$ Zustand, auch angeregte Moleküle in Vibrations-Rotationszuständen des A-Zustandes), werden sich auch die Ionisationsprozesse in stärkerem Maße auf den Laserprozeß auswirken (das den gesamten Ionisationsablauf prägende Aufheizen der anfänglich kreiertelektronen läuft schneller ab).

Wesentliche Ergebnisse der durchgeführten Lasereperimente sind:

- (a) Der 'Energy Pooling'-Stoßprozeß ist der selektive Bevölkeringmechanismus von $5s$, auf dem in der Anfangsphase der resonanten Wechselwirkung des Pumplasers mit dem Na Dampf die Lasertätigkeit zwischen $5s_{1/2}$ und $4p_{3/2}$ beruht
- (b) Parallel zu diesem Pumpmechanismus laufen jedoch auch Ionisationsprozesse ab, die im weiteren Verlauf dieser Wechselwirkung die dominierende Rolle im Dampf über-

nehmen und die Besetzungsinversion zwischen 5s und 4p schließlich abbauen.

Als Zerstörungsmechanismen der Besetzungsinversion sind dabei Populations- und Depopulationsprozesse der am Laserprozeß beteiligten Zustände durch Elektronenstoßprozesse anzunehmen, wie:

- Bevölkering von höheren Zuständen durch inelastische Stöße schneller Elektronen mit Atomen im Grundzustand oder im angeregten 3p Zustand (siehe Gl. (3.82))
- Entvölkering der Laserzustände durch Elektronenstoßionisation (siehe Gl. (3.83))

vor allem aber

- Thermalisierung der Besetzungen der oberen Zustände durch Energietransferstöße mit Elektronen (siehe Gl. (3.85)).

Im Zusammenhang mit dem letzten dieser Punkte kann davon ausgegangen werden, daß die IR Lasertätigkeit zwischen $5s_{1/2}$ und $4p_{3/2}$ dann stark beeinträchtigt wird, wenn die damit verbundene Populations - Depopulationsrate der 5s und 4p Zustände durch Elektronenstoßprozesse etwa der 'Energy Pooling'-Pumprate von 5s entspricht. Mit einem typischen Querschnitt für inelastische Stöße zwischen Elektronen und Na Atomen von etwa 10^{-14} cm^2 (siehe z.B. (3.81)), mit einer Dichte von angeregten 5s Atomen von etwa 10^{13} cm^{-3} (typische im Modell berechnete Dichten von Atomen in diesem Zustand für eine Grundzustandsdichte von 10^{16} cm^{-3} und eine absorbierte Pumpimpulsenergie von etwa 1 mJ), mit einer typischen Relativgeschwindigkeit von etwa $6 \times 10^7 \text{ cm/s}$ zwischen Elektronen und Atomen und mit einer 'Energy Pooling'-Pumprate vom maximal etwa $\dot{n}_{5s} \approx 10^{20} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ (mit $\sigma_{EP}^{5s} \approx 10^{-15} \text{ cm}^2$, $n_{3p} \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}$; siehe Kap. 3.2.2) kann man so eine erforderliche Elektronendichte von etwa 10^{13} cm^{-3} abschätzen, um die Besetzungsinversion zwischen höheren Zuständen zu zerstören (vergleiche damit den nach unten abgeschätzten Wert von etwa $8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ für die totale während des Pumpens gemessene Elektronendichte).

Über die genaue zeitliche Entwicklung der Elektronendichte im Experiment können keine Aussagen getroffen werden. Offensichtlich muß sie jedoch, dem schnellen Abbrechen zufolge, sehr schnell während dieses Abfalls, der typisch etwa 300 ns beträgt (siehe Abb. 4.24), ansteigen.

Vergleiche mit durchgeführten Ionisationsstudien anderer Autoren sind diesbezüglich nicht direkt möglich (dort wird im wesentlichen die zeitliche Entwicklung bei resonanter Einstrahlung eines intensiven ($J = 10^6 \text{ W/cm}^2$), den 3s - 3p Übergang sättigenden, 1 μs langen Dye-Laser in Na (auch Li) Dämpfen mit einer Dichte von 10^{16} cm^{-3} /LMc 76, LMc 80/ und in Na Dämpfen mit einer Dichte von 10^{13} bis 10^{15} cm^{-3} /CRB 81b/ untersucht, die meist im 'Ionization Burnout' des Dampfes noch während des Pump-Laserpulses endet; Anregungssituation in dieser Arbeit: $J_{\text{max}} = 10^5 \text{ W/cm}^2$, meist nichtresonante Anregung auf den Flügeln der stoßverbreiterten D-Linien, keine Sättigung, kein 'Ionization Burnout'). Dennoch sei erwähnt, daß in diesen Experimenten ein nichtlinearer Anstieg der Elektronendichte über mehrere Größenordnungen während weniger Hundert ns innerhalb des Pumppulses beobachtet wird. Dieses plötzliche Einsetzen der Ionisation wird dabei im wesentlichen von der Intensität des Pump-Lasers und der Grundzustandsdichte bestimmt. Dabei sind die dort beobachteten Tendenzen im Ionisationseinsatz die gleichen wie die hier im Abbruch der Lasertätigkeit beobachteten: dort früheres Einsetzen beachtlicher Ionisation, hier früheres Abbrechen der Laserpulse (ersichtlich vor allem aus der Pulslänge) mit steigender Intensität des Dye-Lasers (oder steigender absorbierter Pumpulsenergie) und größer werdender Grundzustandsdichte (siehe auch Ergebnisse des 'LIBORS'-Modells von Measures et al. /MCS 81/).

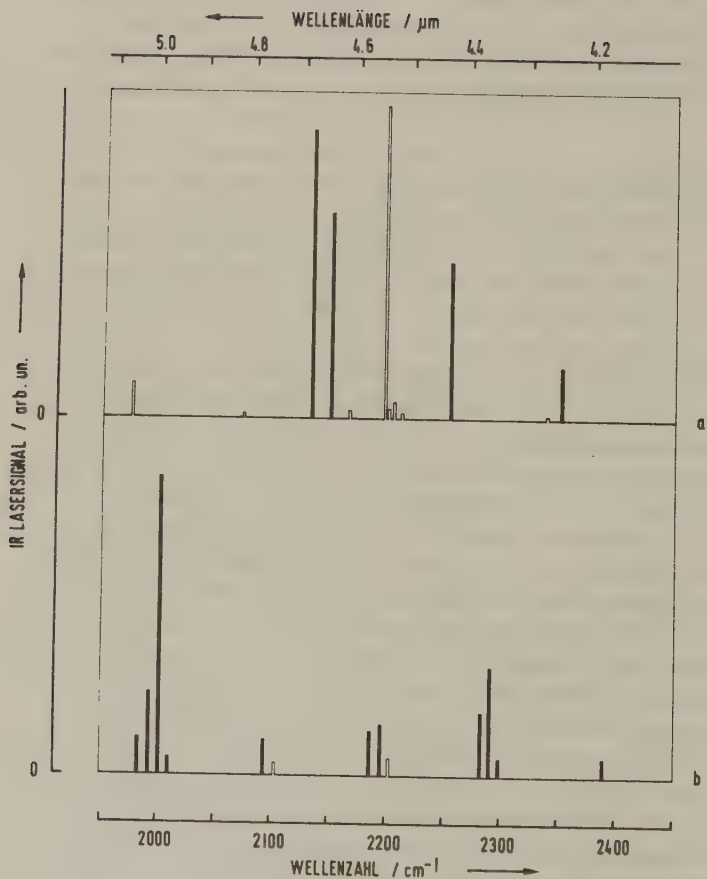


Abb. 4.38: Na_2 Viellinienlaserspektrum bei $\lambda_{\text{in}} = 602 \text{ nm}$ (a) und 610 nm (b) (Bedingungen: Resonator 1, $l_{\text{Dampf}} = 30 \text{ cm}$, $p_{\text{Na}} = 2 \text{ mbar}$, $E_{\text{in}} = 20 \text{ mJ}$, $\delta\lambda_{\text{Laser}} \approx 0.3 \text{ nm}$)

● 4.2 IR Laseremission im Natriummolekül, Ergebnisse, Diskussion ●

Wie zu Anfang dieses Kapitels erwähnt, kommt es auch bei einer Vielzahl von Anregungswellenlängen, die nicht mit atomaren Übergängen in Verbindung gebracht werden können, zu IR Lasertätigkeit im Natriumdampf. In Abb. 4.1, dem Anregungsspektrum im Bereich zwischen 575 und 610 nm, erkennt man deutlich etwa 36 dieser Anregungslinien. Die Breite der Linien wird dabei im wesentlichen durch die Linienbreite des Pump-lasers bestimmt (bei Benutzung des gitterbetriebenen Dyelasers: etwa 0.05 nm; bei Verwendung eines Interferenzfilters als Abstimmeelement: etwa 0.3 nm; im letzteren Fall kommt es dann wegen der wesentlich größeren Bandbreite größtenteils zur Überlappung der in Abb. 4.1 gezeigten, nahe beieinander liegenden Linien (siehe Fig. 2 in /MHe 81/)).

Die im folgenden vorgestellten Ergebnisse wurden im wesentlichen mit der Kombination linearer Heatpipeofen (Tab. 2.1, $l_{\text{Dampf}} = 30 \text{ cm}$), Resonator 1 (Tab. 2.3) und interferenzfilterbetriebener, blitzlampengepumpter Farbstofflaser (Tab. 2.2) erzielt. Der Gesamtaufbau der Apparatur (Abb. 2.1) wird dadurch nur geringfügig verändert. Der typische, im Experiment benutzte Na Dampfdruck beträgt 2 mbar (Partialdruck des Dimers etwa 4% von dem des Monomers, siehe Abb. 2.6).

Die große Zahl der Linien in diesem Anregungsspektrum deutet auf einen Pumpprozeß hin, der im Natriummolekül ablaufen muß. Diese Vermutung wird verstärkt durch die Tatsache, daß jede dieser Anregungswellenlängen zu einer Viel-linienlaseremission im Infraroten zwischen 4 und 5 μm führt. Zwei typische Laserausgangsspektren sind in Abb. 4.38 gezeigt. Auch hier kann die Vielfalt der Linien nur im Zusammenhang mit molekularen Übergängen verstanden werden. Abb. 4.38.b ähnelt dabei sehr stark einem typischen Resonanzfluoreszenzspektrum eines homonuklearen, zweiato-migen Moleküls (siehe z.B. Na_2 B-X Resonanzfluoreszenzspek-

trum /DMZ 79/). Daß die Verhältnisse in den Ausgangsspektren nicht immer so einfach sind, zeigt Abb. 4.38.a.

Da die Wellenlängen der beobachteten Linien im infraroten Spektralbereich liegen, müssen Übergänge zwischen höheren elektronischen Zuständen des Na_2 Moleküls betrachtet werden. Jedoch verhindern eine Reihe von Problemen die eindeutige Zuordnung der Spektren zu möglichen in Frage kommenden Zuständen: noch teilweise unsichere Molekülkonstanten einer Vielzahl von beobachteten höheren Zuständen des Na_2 Moleküls /CTJ 81, TJS 81/ (siehe auch Abb. 3.1.a), die Laserdynamik mit damit verbundenem Konkurrenzverhalten zwischen verschiedenen Übergängen (z.B. Unterdrückung erlaubter Übergänge), Population von mehr als einem anfänglichen Rotationszustand innerhalb des höheren elektronischen Molekülzustandes durch den optischen Pumpprozeß oder durch Stoßrelaxation. Dies macht die doch größtenteils in den Spektren beobachtete Kompliziertheit verständlich.

Gerade die letztgenannte Problematik wird deutlich, wenn man die Zeitabhängigkeit der IR Laseremission studiert. Beispiele dafür sind in Abb. 4.39 für zwei verschiedene IR Laserlinien bei schmalbandiger Anregung des Pumplasers mit einer Wellenlänge von 605.4 nm zu erkennen. Während das Lasersignal bei 4.591 μm im wesentlichen dem Pumpimpuls nach Erreichen der Schwelle bei 250 ns folgt, setzt der Laserpuls bei 4.891 μm offensichtlich verzögert um etwa 500 ns später ein. In diesem Zusammenhang sei erwähnt, daß unter den im Experiment herrschenden Bedingungen die Stoßzeit für die Umverteilung der Besetzung von Rotationszuständen (typische Querschnitte: ungefähr 10^{-14} cm^2 /Dem 81/) typisch bei etwa 400 ns liegt. Neben direkten optischen Populationsmechanismen muß also auch von einer Besetzung der oberen Laserzustände durch Stoßumverteilung ausgegangen werden.

Während die Na_2 Laserstrahlung im sichtbaren Spektralbe-

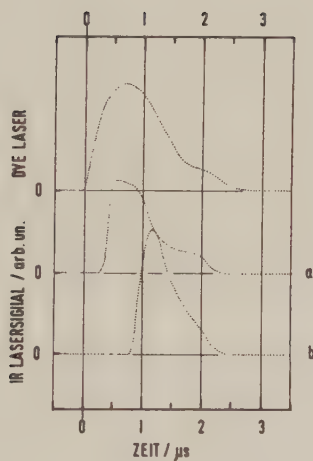


Abb. 4.39: Zeitabhängigkeit von zwei unterschiedlichen molekularen Laserübergängen mit einer Wellenlänge von $4.591 \mu\text{m}$ (a) und $4.891 \mu\text{m}$ (b) im Vergleich mit dem Pumpuls (oben) bei einer Anregungswellenlänge von $\lambda_{\text{in}} = 605.35 \text{ nm}$ (sonstige Bedingungen: wie Abb. 4.38)

reich Übergängen zwischen Vibrations-Rotationszuständen des $A^1\Sigma_u^+$ oder $B^1\Pi_u$ Zustandes und des $X^1\Sigma_g^+$ Grundzustandes entspringen /WSF 77, HHB 76, IUM 76/, kann Emission im Bereich zwischen 4 und 5 μm nur die Folge von Übergängen zwischen Vibrations-Rotationsniveaus höherer elektronischer Zustände des Moleküls sein. Die Anregung dieser höher liegenden molekularen Zustände kann nur über den in Kap. 3.2.4 beschriebenen, paritätserhaltenden Zweiphotonenabsorptionsprozeß (siehe Gl. 3.72) aus dem $X^1\Sigma_g^+$ Grundzustand in höhere Zustände ($^1\Sigma_g^+$ oder $^1\Pi_g$) erfolgen. Dabei wird die Zweiphotonenanregung durch resonante oder nahezu resonante Vibrations-Rotationsniveaus des $A^1\Sigma_u^+$ Zustandes unterstützt. Diese Tatsache in Verbindung mit den Auswahlregeln für den Zweiphotonenprozeß erklärt das im Vergleich zu einem Absorptionsspektrum des Na_2 Moleküls im betrachteten Spektralbereich relativ einfach Aussehen des Anregungsspektrums (vergleiche X-A Absorptionsbanden des Na_2 /LGH 77/).

In Abb. 4.40 ist das Anregungsspektrum im näheren Bereich der atomaren 3s - 5s Zweiphotonenresonanz bei 602.23 nm (siehe Kap. 4.1.1) dargestellt. Dieses Spektrum läßt sich gut mit dem von Woerdman aufgenommenen dopplerfreien Zweiphotonenspektrum im gleichen Wellenlängenbereich vergleichen (siehe Fig. 2 in /Woe 76/). Dort liegen innerhalb der hier registrierten breiten Anregungslinien um 602.17 nm eine starke und mehrere schwache molekulare Zweiphotonenresonanzen (stark und schwach bezieht sich dabei auf den von Woerdman benutzten Nachweis der Zweiphotonenabsorption über sichtbare Fluoreszenz; diesbezüglich läßt sich die hier beobachtete IR Lasertätigkeit sicher nicht vergleichen). Die im Anregungsspektrum beobachtete breite Linie deutet also offensichtlich auf eine Überlappung mehrerer molekularer Zweiphotonenübergänge hin (was auch vermutet werden kann, wenn man die etwa 0.04 nm breite Linie mit der etwa 0.01 nm breiten Pumplaserlinie vergleicht). Eine gleichzeitige Bevölkering verschiedener höherer Zustände ist also durchaus möglich (vor allem bei der Be-

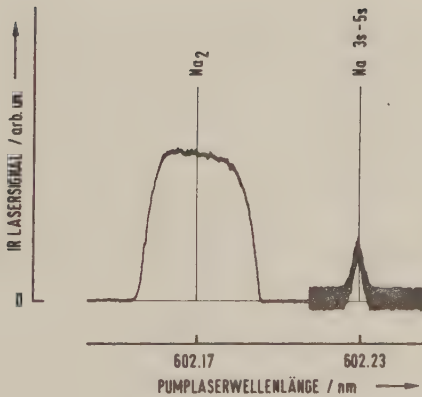


Abb. 4.40: Anregungsspektrum bei 602 nm nahe der atomaren Zweiphotonenresonanz 3s - 5s (rechts: 3.4 μm Laserstrahlung, 10 x größer aufgetragen; links: Viellinienlaseremission zwischen 4 und 5 μm) (Bedingungen: nichtlinearer Wellenlängenscan, $\delta\lambda_{\text{Laser}} \approx 0.01 \text{ nm}$, $E_{\text{in}} = 12 \text{ mJ}$, sonst wie in Abb. 4.38)

nutzung einer größeren Linienbreite des Pumplasers). In diesem Anregungsspektrum beachte man auch den Unterschied in der Signalstärke bei atomarer und molekularer Zweiphotonenresonanz. Die mehr als zehnfach intensivere molekulare Lasertätigkeit unterstreicht dabei die Stärke des molekularen Pumpprozesses, der im Gegensatz zum atomaren Übergang durch resonante Zwischenzustände unterstützt wird (daneben bestehen Bedampfungsunterschiede für die Wellenlängen von atomarer ($3.4 \mu\text{m}$) und molekularer Lasertätigkeit ($4 - 5 \mu\text{m}$); siehe Resonator 1 in Tab. 2.3).

Bei den durch Zweiphotonenpumpen bevölkerten hohen Zuständen - den oberen Laserzuständen - handelt es sich um Schwingungs-Rotationsniveaus von $^1\Sigma_g^+$ oder $^1\Pi_g$ Zuständen, die etwa $32\,800 - 34\,800 \text{ cm}^{-1}$ über Schwingungs-Rotationsniveaus des $X^1\Sigma_g^+$ Grundzustandes liegen müssen (siehe Abb. 5.1). Solche höheren Zustände sind in den letzten Jahren von verschiedenen Autoren studiert worden (siehe vor allem Arbeiten von Schawlow et al. zur Identifizierung von höheren Zuständen mit Hilfe der 'Two-Step Polarization Labeling'-Methode /CJM 81, CTJ 81/; siehe Abb. 3.1a). Als untere Laserzustände müssen dann Schwingungs-Rotationszustände eines elektronischen Zustandes mit ungerader Parität - dem $C^1\Pi_u$ Zustand (neuere Molekülkonstanten dieses Zustandes siehe /VVS 82/) - fungieren. Wie in Abb. 5.1 dargestellt, würde das bedeuten, daß es sich um Zustände mit relativ hohen Schwingungsquanten handelt. Der in Abb. 4.38,b zu erkennende Schwingungsabstand von 102 cm^{-1} läßt sich z.B. gut mit dem Abstand höherer Schwingungszustände (um etwa $v=16$) des $C^1\Pi_u$ Zustandes vergleichen.

Daß es sich bei dem Pumpprozeß wirklich um Zweiphotonenabsorption handelt, demonstriert auch hier die Messung des Laserausgangssignals als Funktion der Pumpimpulsenergie über der Schwelle. Die logarithmische Auftragung (Abb. 4.42) zeigt, wie für einen Zweiphotonenprozeß erwartet, die nahezu quadratische Abhängigkeit (Abweichungen bei

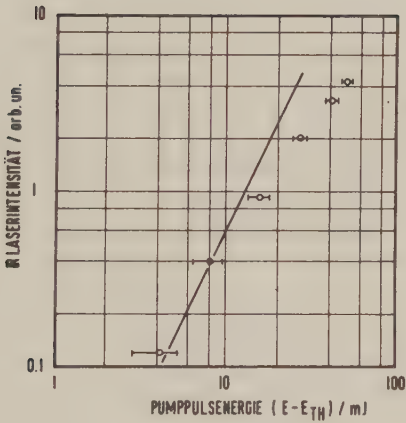


Abb. 4.42: Zeitlich integriertes IR Viellinienlasersignal in Abhängigkeit von der Pumppulsenergie oberhalb der Schwelle ($E_{th} = 4$ mJ; Bedingungen: $\lambda_{in} = 587.8$ nm, sonst wie Abb. 4.38) verglichen mit einer für Zweiphotonenpumpen erwarteten quadratischen Abhängigkeit.

großer Pumpimpulsenergie deutet auf Sättigung im Zweiphotonenanregungsprozeß hin).

Die gemessene Ausgangsleistung, beispielsweise bei einer Pumpwellenlänge, die zur starken Viellinienlasertätigkeit führt (sonstige Bedingungen: Resonator 1, $l_{\text{Dampf}} = 30$ cm, $p_{\text{Na}} = 2$ mbar, interferenzfilterbetriebener Dye-Laser mit 0.3 nm Bandbreite, $I_{\text{in}} = 40$ kW), beträgt etwa 2 mW. Bei Einengung der Linienbreite auf 0.01 nm kann dieser Wert um etwa 2 Größenordnungen vergrößert werden.

● 5. ZUSAMMENFASSUNG ●

In dieser Arbeit wird über die Untersuchung von IR Laser-tätigkeit in optisch gepumptem Natriumdampf berichtet.

Die Anregung des in einem Heatpipeofen erzeugten Metall-dampfes wird mit einem ca. 1 μ s langen Dyelaserpuls mit Wel-lenlängen im Bereich zwischen 575 und 616 nm vorgenommen. Die resultierende IR Laseremission entspringt Übergängen zwis-chen höheren elektronischen Zuständen im Atom und Molekül mit diskreten Wellenlängen zwischen 2 und 5 μ m.

Wie in Abb. 5.1 illustriert handelt es sich im einzelnen um:

- molekulare Viellinienlaseremission mit Wellenlängen im 4 - 5 μ m-Bereich zwischen Schwingungs-Rotationszuständen höher gelegener $^1\Sigma_g^+$ oder $^1\Pi_g$ Zustände und dem $C^1\Pi_u$ Zustand, ge-pumpt durch Zweiphotonenanregung über resonante, als Zwi-zustände fungierende Schwingungs-Rotationszustände des $A^1\Sigma_u^+$ Zustandes. Beobachtet wird diese Laseremission bei vielen über den gesamten Bereich zwischen 575 und 610 nm verteil-ten Anregungswellenlängen
- atomare Laseremission hauptsächlich auf dem Übergang $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ bei 3.415 μ m, daneben aber auch auf dem Konkurrenz-übergang $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ und dem Kaskadenübergang $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ bei 3.408 und 2.206 μ m. Diese Laseremission wird beobachtet bei:
 - (i) direkter Zweiphotonenanregung ($3s-5s$) bei einer Anre-gungswellenlänge von 602.23 nm
 - (ii) stoßinduzierter Zweistufenanregung ($3s-5s$) bei Pump-wellenlängen, die den Übergängen $3p_{1/2,3/2} - 5s_{1/2}$ entsprechen
 - (iii) Bevölkerung von $5s$ über den Energietransfer beim Stoß zweier Natriumatome im ersten Resonanzzustand, dem sogenannten 'Energy Pooling'-Stoßprozeß, nach der An-regung des Natriumdampfes auf den D-Linien.

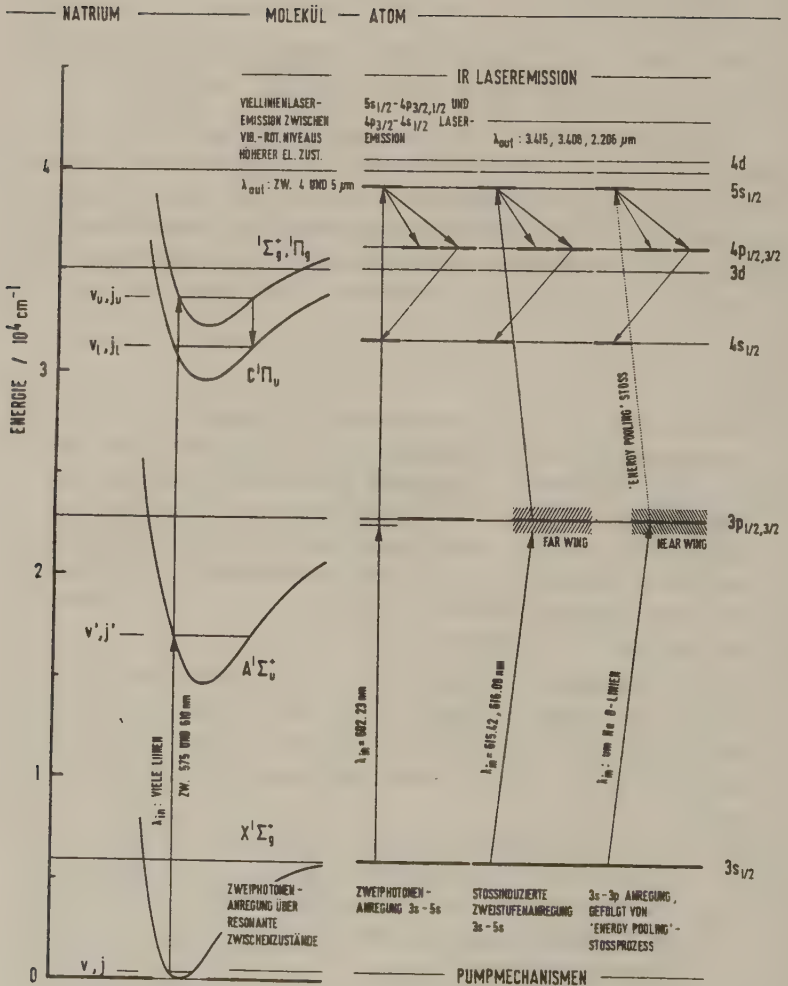


Abb. 5.1: Überblick über die untersuchten Laserprozesse

Die IR Lasertätigkeit im Molekül eröffnet dabei interessante Anwendungsmöglichkeiten zur Spektroskopie höher liegender molekularer Zustände einschließlich kinetischer Studien an solchen Systemen. Dabei gestattet gerade die große Signalverstärkung des Laserprozesses auch die Beobachtung von sonst schwachen IR Übergängen. Da die Akzentuierung in diesem Fall mehr auf Möglichkeiten zur Erzeugung von IR Strahlung im Natriumdampf lag, wurde dieser Aspekt nicht weiter verfolgt.

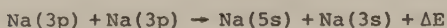
Hauptaugenmerk wurde in den Untersuchungen auf die atomaren Laserprozesse gelegt. Wobei das Studium der Lasertätigkeit nach den optisch direkten Pumpmechanismen - also nach direkter und stoßinduzierter Zweiphotonenanregung von $3s$ nach $5s$ - Ausgangspunkt der Untersuchungen und Grundlage für das Verständnis dieser Laserprozesse bildet.

In beiden Fällen zeigt sich, daß ein quasistationärer Laserbetrieb zwischen den Zuständen $5s_{1/2}$ und $4p_{3/2}$ möglich ist und die Laserpulse nach Erreichen der Schwelle dem Pump-laserpuls im wesentlichen folgen. Die experimentellen Beobachtungen werden durch Modellrechnungen, die auf einfachen, den Laserprozeß beschreibenden Ratengleichungen basieren, recht gut beschrieben. Wie die Modellergebnisse zeigen, spielt bei hohen Grundzustandsdichten insbesondere der inverse 'Energy Pooling'-Stoßprozeß als Abbaumechanismus der Bevölkerungs-inversion eine entscheidende Rolle. Experimentell beobachtet man daher eine merkliche Verkürzung der IR Laserpulse bei Na Dichten von etwa 10^{17} cm^{-3} . Andere Prozesse, wie Assoziative Ionisation oder Photoionisation, haben dagegen keinen Einfluß auf die Lasertätigkeit.

In zahlreichen Arbeiten wird in der Literatur eine Vielzahl von Phänomenen in resonant gepumpten Alkalimetalldämpfen beschrieben, die nur zum Teil verstanden sind /KMo 82, LMc 80/. Die vorgestellte Arbeit liefert auch hier einen Beitrag zur Klärung der dabei auftretenden Prozesse. Erstmals wird in diesem Zusammenhang über IR Lasertätigkeit zwischen höheren atomaren Zuständen nach der resonanten Anregung eines

Natriumdampfes auf den D-Linien berichtet.

Im Gegensatz zur Lasertätigkeit nach Zweiphotonenpumpen werden hier jedoch sehr kurze $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulse beobachtet. Selektiver Pumpmechanismus dieser Lasertätigkeit ist dabei der sehr effizient ablaufende 'Energy Pooling'-Energietransferprozeß beim Stoß zweier angeregter Atome im $3p$ Zustand:



Ein auf diesem Pumpprozeß aufbauendes Lasermodell unter Verwendung der in jüngster Zeit verlässlich bestimmten Wirkungsquerschnitte /HGa 83a, ABM 83/ liefert dagegen auch lange, dem Pumpuls folgende IR Laserpulse.

Diese Diskrepanz kann nur durch Ionisationsmechanismen erklärt werden, wie sie unter solchen Bedingungen ebenfalls stattfinden /LMc 76, CRB 81/. Die resultierende Plasmabildung, die parallel zum Pumpmechanismus abläuft, greift insbesondere zu späten Zeiten nach einigen 100 ns während des Pumppulses dominierend in das Geschehen im Dampf ein und zerstört die aufgebaute Besetzungsinversion.

Diese Erklärung wird unterstützt durch Beobachtungen im Verhalten der Laserpulse bei Variation der eingestrahlten Pumpulsenergie und der Grundzustandsdichte, sowie durchgeführte Ionisations- und IR Fluoreszenzstudien.

Die hier erhaltenen Ergebnisse beim zeitlichen Studium der IR Lasertätigkeit zeigen also eindeutig die Existenz einer effizienten, selektiven Bevölkering höherer Zustände durch 'Energy Pooling'-Stoßprozesse vor dem Einsetzen merklicher Ionisation und damit einhergehender Be- und Entvölkering dieser Zustände durch Elektronenstoßprozesse. Dieser experimentelle Befund unterstreicht deshalb die Notwendigkeit der Berücksichtigung solcher Prozesse zum Verständnis der beobachteten Ionisationsphänomene und deren Beschreibung durch geeignete Modelle /MCS 81, Mor 83/, nicht zuletzt da darauf

aufbauende Elektronenerzeugungsmechanismen entscheidend in den Ionisationsablauf eingreifen können /GLW 82, HGa 83a/.

Im Hinblick auf diese Problematik kann damit die Untersuchung der Zeitabhängigkeit der IR Laseremission zwischen höheren Zuständen als neues diagnostisches Mittel zum Studium der Kinetik in solchen resonant gepumpten Metalldämpfen angesehen werden.

Abschließend soll bemerkt werden, daß solche 'Energy Pooling'-gepumpte IR Laseremission vielversprechend als neues Metalldampflasersystem eingesetzt werden könnte, wenn man die in solchen Dämpfen mögliche Plasmabildung verhindert. Geeignete Gasgemische, die das Aufheizen der Elektronen verhindern /PHA 78/, bieten sich hier an um die Effizienz zu steigern. Besonders attraktiv wird das System durch mögliche, sehr breite Anregungsprofile, wie das Beispiel eines bei hohem Puffergasdruck aufgenommenem Anregungsspektrum in Abb. 5.2 zeigt. Damit wird blitzlampen- oder sonnengepumpte Lasertätigkeit in Metalldämpfen vorstellbar. Solche mehr technologischen Aspekte wurden jedoch in dieser Arbeit nicht behandelt.

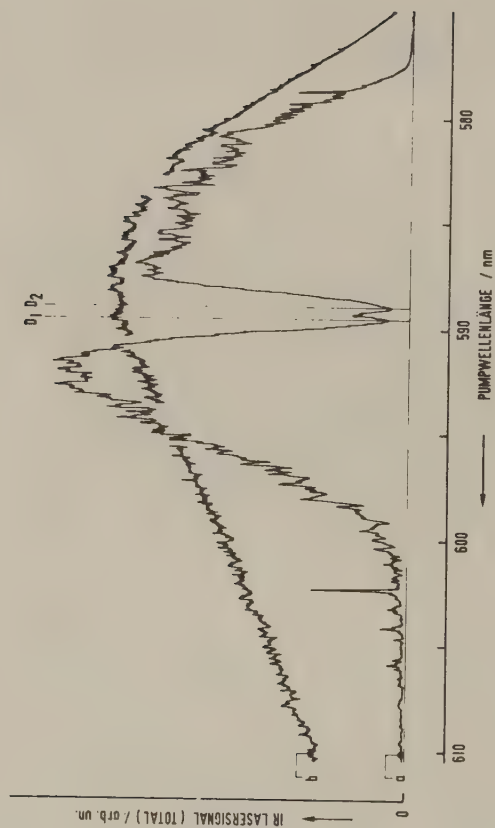


Abb. 5.2: a: Anregungsspektrum der $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Lasertätigkeit im Falle eines Na-Ar Gasgemisches (Bedingungen: $p_{\text{Tot}} = 300$ mbar mit $p_{\text{Ar}}/p_{\text{Na}} = 300/1$, sonst wie Abb. 4.1)
b: Dyelaserabsimulierung.

● ANHANG ●

● A1: Fortran-Programm eines Lasersmodells (Version 1, Tab. 3.6) ●

```

C      PROGRAM IRNALAS
C
C      *****
C      *MODELL EPILAS
C      *ENERGY POOLING PUMPING OF 5S AND 4D-SPONTANEOUS EMISSION,
C      *TRAPPING OF 3P, LASERTRANSITIONS 5S1/2-4P3/2;1/2
C      *****
C
C      CHARACTER*10 FNAME
C      REAL NNUL,K4,K5,KN4,KN5,LENGTH
C      REAL*8 N(13),NS(13)
C
C      *****      READ SPONT. TRANS. PROBAB. (A)      *****
C
C      DIMENSION A(24)
C      DATA A/2.29,4.58,1.70,3.38,9.87,1.97,5.72,
1 1.14,11.9,6.84,2.85,6.44,0.15,2.85,6.47,0.016,0.14,
2 8.26,16.4,41.3,8.26,49.5,58.9,59.1/
C
C      *****      NORMALIZING A VALUES TO GHZ      *****
C
C      DO 1 I=1,24
1  A(I)=A(I)*.001
C
C      *****      INITIALIZING ALL QUANTITIES      *****
C
C      SODIUM GROUND STATE DENSITY (NNUL)
C      ABSORBED PUMPPULSEENERGY (EABS)
C      LENGTH OF VAPORZONE (LENGTH)
C
C      TYPE 100
C      ACCEPT 105,NNUL
C      IF (NNUL.EQ.0.) NNUL=4.4E16
3  TYPE 120
C      TYPE 125
C      ACCEPT 110, DT, TEND
C      IF (DT.EQ.0.) DT=0.05
C      IF (TEND.EQ.0.) TEND=1000.
C      IF (DT.EQ.0.05) FNAME='FV1005.DAT'
C      IF (DT.EQ.0.5) FNAME='FV105.DAT'
C      IF (DT.EQ.0.5.OR.DT.EQ.0.05) GO TO 5
C      TYPE 270
C      GO TO 3
5  TYPE 130
C      ACCEPT 105, EABS
C      IF (EABS.EQ.0.) EABS=1.
C      TYPE 220
C      ACCEPT 230, IPRINT
C      IF (IPRINT.EQ.0) IPRINT=INT(5./DT)
C      TYPE 240
C      ACCEPT 260, IF
C      TYPE 280
C      ACCEPT 105, LENGTH
C      IF (LENGTH.EQ.0.) LENGTH=1.

```

```

C          *****          CALLING MULTIPLICATIONFACTOR          *****
C          FOR FITTING THE RATE OF STIM-
C          ULATED EMISSION (CK)
C
C          TYPE 290
C          ACCEPT 300, WER
C          IF (WER.EQ.0.0) WER=1.
C
C          *****          RATE FOR STIM. ABS. (R1) OF PUMPLASER IN GHZ          *****
C          ASSUME DL DIAMETER OF 3 MM, MODEMATCHING
C
C          BI=6.23E13*EABS/(NNUL*LNTH)
C
C          *****          TRAPFACTORS (G) FOR RADIATION TRAPPING          *****
C          ON 3S-3P TRANSITION
C
C          G1=1.
C          G2=1.
C          IF (TF.NE.'Y') GO TO 10
C          G1=4.83E-3
C          G2=4.21E-3
10          A(23)=A(23)*G1
C          A(24)=A(24)*G2
C
C          *****          ENERGYPPOOLING RATECONST. IN CM3/S-1          *****
C          FOR 4D (K4) AND 5S (K5)
C
C          K4=2.73E-10*2
C          K5=1.76E-10*2
C
C          *****          RATE FOR STIM EMIS. IN GHZ (CK)          *****
C          ASSUME: RESONATOR WITH 135 CM LENGTH,
C          3 MM IR BEAM WAIST,
C          DOPPLERBROADENED LINEWIDTH
C          CK1: 5S1/2-4P3/2, CK2: 5S1/2-4P1/2
C
C          CK1=1.33E-10*WER
C          CK2=6.73E-11*WER
C
C          *****          ACTIVE VOLUME (VACT)          *****
C          ASUME DL DIAM. 3 MM, MODEMATCHING
C
C          VACT=7.07E-2*LNTH
C
C          *****          CAVITY LIFETIME (TAUC)          *****
C          ONLY OUTPUT LOSSES
C
C          TAUC=7.35
C
C          *****          OUTPUT          *****
C
C          OPEN (UNIT=30,STATUS='NEW',FILE='LASOUT.DAT')
C          OPEN (UNIT=10,STATUS='OLD',FILE=FNAME)
C          WRITE (30,140)
C          WRITE (30,150) NNUL,EABS,DT
C          WRITE (30,180) K4,K5
C          WRITE (30,250) LNTH
C          WRITE (30,190) CK1,CK2
C          WRITE (30,200)
C          WRITE (30,201)

```

```

C      *****      NORMALIZATION OF EP RATECONST.      *****
C
C      KN4=K4*NNUL*1.E-9
C      KN5=K5*NNUL*1.E-9
C      DO 20 I=1,13
C
C      *****      INITIAL CONDITIONS      *****
C
20      N(1)=0.000
C      N(11)=1.000
C
C      *****      READ TIME DEPENDENCE OF DYE LASER      *****
C
C      READ (10,110) T,DYLAS
C      KOUNT=0
C      WRITE (30,210) T,DYLAS,N(1),N(4),N(5),N(9),N(10),
C      1 N(12),N(13)
C
C      *****      ALL INITIALIZED      *****
C
30      READ (10,110) T,DYLAS
C      KOUNT=KOUNT+1
C      DO 40 I=1,13
C      40      NS(I)=N(I)
C
C      *****      PUMP- AND RELAXATION IN ATOMIC SYSTEM      *****
C
C      N(1)=(0.5*KN5*(NS(9)+NS(10))*2-NS(1)*(A(1)+A(2)+
C      1 A(3)+A(4))-CK1*NS(12)*(NS(1)-0.5*NS(5))-CK2*NS(13)*(NS(1)-
C      2 NS(4)))*DT+NS(1)
C
C      N(2)=(0.2*KN4*(NS(9)+NS(10))*2-NS(2)*(A(5)+A(6)+
C      1 A(7)+A(8)))*DT+NS(2)
C
C      N(3)=(0.3*KN4*(NS(9)+NS(10))*2-NS(3)*(A(9)+A(10)))*
C      1 DT+NS(3)
C
C      N(4)=(A(3)*NS(1)+A(7)*NS(2)-(A(11)+A(12)+A(13))*NS(4)+
C      1 CK2*NS(13)*(NS(1)-NS(4)))*DT+NS(4)
C
C      N(5)=(A(4)*NS(1)+A(8)*NS(2)+A(10)*NS(3)-(A(14)+A(15)+
C      1 A(16)+A(17))*NS(5)+CK1*NS(12)*(NS(1)-0.5*NS(5)))*DT+NS(5)
C
C      N(6)=(A(12)*NS(4)+A(15)*NS(5)-(A(18)+A(19))*NS(6))*DT+
C      1 NS(6)
C
C      N(7)=(A(13)*NS(4)+A(16)*NS(5)-(A(20)+A(21))*NS(7))*DT+
C      1 NS(7)
C
C      N(8)=(A(17)*NS(5)-A(22)*NS(8))*DT+NS(8)
C
C      N(9)=(A(18)*NS(6)+A(1)*NS(1)+A(5)*NS(2)+A(20)*NS(7)-
C      1 (A(23)+(KN4+KN5)*(NS(9)+NS(10)))*NS(9)+DYLAS*BI*(NS(11)-
C      2 NS(9)))*DT+NS(9)
C
C      N(10)=(A(19)*NS(6)+A(2)*NS(1)+A(6)*NS(2)+A(9)*NS(3)+
C      1 A(21)*NS(7)+A(22)*NS(8)-(A(24)+(KN4+KN5)*(NS(9)+NS(10)))*
C      2 NS(10))*DT+NS(10)
C

```

```

N(11)=(A(11)*NS(4)+A(14)*NS(5)+A(23)*NS(9)+A(24)*NS(10)+
1 0.5*(KN4+KN5)*(NS(9)+NS(10))*2-BI*DYLAS*(NS(11)-NS(9)))*
2 DT+NS(11)

*****
***** LASER PROCESSES *****
*****

***** 5S1/2 - 4P3/2

N(12)=(VACT*NNUL*(CK1*NS(12)*(NS(1)-0.5*NS(5))+CK1*NS(1))-
1 NS(12)/TAUC)*DT+NS(12)

***** 5S1/2 -4P1/2

N(13)=(VACT*NNUL*(CK2*NS(13)*(NS(1)-NS(4))+CK2*NS(2))-
1 NS(13)/TAUC)*DT+NS(13)

*****

IF(MOD(KOUNT,IPRINT).NE.0) GO TO 50

***** OUTPUT *****

WRITE (30,210) T,DYLAS,N(1),N(4),N(5),N(9),N(10),
1 N(12),N(13)
50 CONTINUE
IF (T.LE.TEND) GO TO 30
100 FORMAT(' ENTER GROUND STATE DENSITY')
105 FORMAT (F10.4)
110 FORMAT(2F10.4)
120 FORMAT(' ENTER DT, TEND (NSEC), X2F10.4U')
125 FORMAT('      V      V')
130 FORMAT(' ENTER ABSORBED ENERGY IN MILLIJOULES')
140 FORMAT('0,10X,'* MODELL EPILLAS - EP OF 5S,4D;SPON.EM.;
1 3P TRAP;LASER 5S-4P'/)
150 FORMAT(6X,'GROUND STATE DENSITY = ',1PE12.4,'(PER CC)',
1 2X,'ABSORBED ENERGY = ',1PE12.4,'(MJ)',2X,
2 'INTEGRATION STEP = ',0PF12.6,'(NSEC)'/)
180 FORMAT(6X,'E-POOLING 4D = ',1PE12.4,10X,'E-POOLING 5S = ',
1 1PE12.4,' (CC/SEC)'/)
190 FORMAT(6X,'K 5S-4P3 = ',1PE12.4,10X,'K 5S-4P1 = ',
1 1PE12.4,' (GHZ)'/)
200 FORMAT(T8,'T',T19,'DYE LASER',T35,'5S1/2',T49,'4P1/2',T63,
1 '4P3/2',T77,'3P1/2',T91,'3P3/2',T105,'NPH1',T119,'NPH2'/)
201 FORMAT(' *')
210 FORMAT(1X,9(1PD14.5))
220 FORMAT(' ENTER PRINTOUT FREQUENCY X13U')
240 FORMAT(' TRAPPING?')
230 FORMAT(I3)
250 FORMAT(6X,'VAPOR ZONE LENGTH = ',F10.4,' (CM)'/)
260 FORMAT (A1)
270 FORMAT (' NO INPUT DATA FILE WITH THAT DT, DU HUHN!')
280 FORMAT (' ENTER LENGTH IN CM')
290 FORMAT (' ENTER MULTIPLYING FACTOR FOR -K-')
300 FORMAT (F10.4)
END
$

```


● A2: Relaxationsschwingungen im Experiment ●

Wie die Ergebnisse der Modellberechnungen (siehe Abb. 4.10 und 4.35) zeigen, wird die Amplitude, sowie die Frequenz des Einschwingvorgangs bei kleinen Pumpleistungen sehr groß, so daß sie dann auch mit dem in den Untersuchungen verwendeten IR Detektor mit einer Ansprechzeit von 50 ns eindeutig registriert werden können.

Abb. A1 zeigt einen solchen Fall. Bei der Mittelung über 100 Einzelschüsse wird die ganze Struktur verwaschen und man kann sie nur noch zu Beginn der Laserpulse erkennen (siehe z.B. Abb. 4.24).

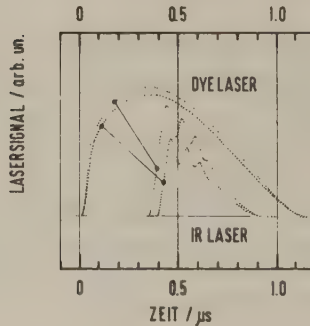


Abb. A1: Beobachtetes 'Spiking' bei der $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laser-tätigkeit (Anregung auf der Na D_1 -Linie bei geringer Dichte und bei geringer absorbiertener Pump-pulsenergie).

● A3: IR Fluoreszenzstudien ●

Im folgenden sollen Ergebnisse von Fluoreszenzexperimenten vorgestellt werden. Die dabei gewonnenen Erkenntnisse sollen zur Klärung der Annahmen beitragen, die im Hinblick auf die Beeinträchtigung der atomaren Laserprozesse (siehe Kap. 4.1) durch mögliche Ionisationsmechanismen gemacht wurden. Es handelt sich dabei um die ersten Fluoreszenzstudien, die im infraroten Spektralbereich an optisch gepumptem Metaldampf durchgeführt wurden.

Experimentelle Details:

- Schema des Aufbaus in Abb. 2.1;
- geeignete Abbildung des durch den Pumplaser erzeugten zylinderförmigen Anregungsvolumens auf den 2.5 mm breiten Eintrittsspalt des Monochromators;
- Monochromator 2 aus Tab. 2.5 (Gitter: 150 L/mm, Blazewellenlänge: 2.5 μm , Auflösung in 1. Ordnung: $\Delta\lambda_{1/2} \approx 0.075 \mu\text{m}$ (ausreichend zur Unterscheidung der in Betracht kommenden Feinstrukturübergänge));
- Nachweis bezüglich spektraler Unterschiede nicht kalibriert;
- Schema der elektronischen Meßanordnung in Abb. 2.13 und 2.14.

● A3.1 IR Fluoreszenz nach stoßinduzierter Zweistufenabsorption von $5s_{1/2}$ ●

Experimentelle Bedingungen:

- Bevölkerung von $5s_{1/2}$ durch eingestrahlten Pumplaser mit $\lambda_{\text{in}} = 616.08 \text{ nm}$ ($\approx 3p_{3/2} - 5s_{1/2}$) und $E_{\text{in}} = 1 \text{ mJ}$; Natriumdichte: $n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

Ergebnisse:

(i) IR Fluoreszenzspektrum:

- Abb. A2; Neben dominanter $5s - 4p$ Fluoreszenz auch mehr oder weniger schwache Fluoreszenz von höher liegenden Zuständen (bis zu 3840 cm^{-1} oder 7kT

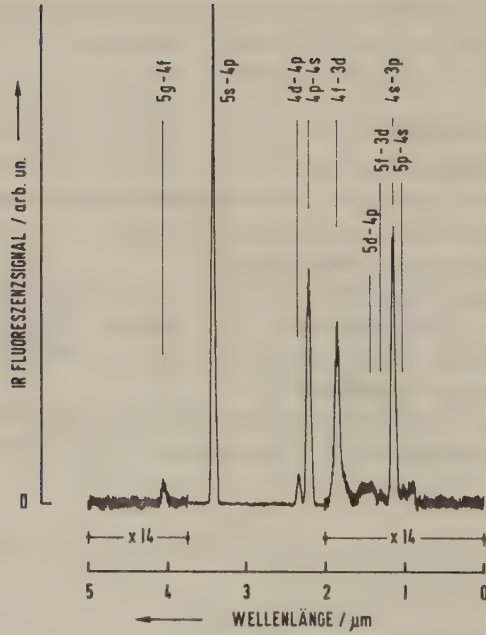


Abb. A2: IR Fluoreszenzspektrum nach stoßinduzierter Zweistufenanregung von 5s (Bedingungen: $p_{\text{Tot}} = 11$ mbar mit $p_{\text{Na}}/p_{\text{Ar}} = 10/1$, $\lambda_{\text{in}} = 616.08$ nm, $E_{\text{in}} = 1$ mJ, Boxcargate: 3 μs)

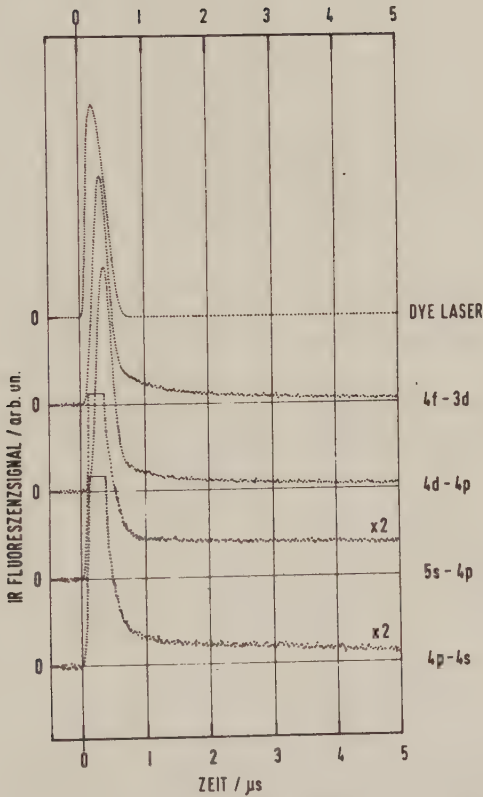


Abb. A3: Zeitabhängigkeit der beobachteten IR Fluoreszenzsignale nach stoßinduzierter Zweistufenanregung von 5s (Bedingungen: wie Abb. A2; jeweils 512 Aufnahmen mit der TR-SA Kombination, Dwelltime: 0.01 μ s; anfängliche 5s-4p, 4p-4s Fluoreszenz übersteuert)

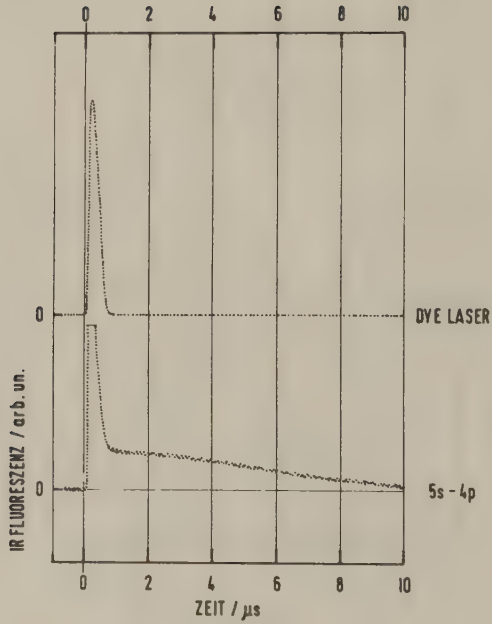


Abb. A4: Zeitabhängigkeit der beobachteten 5s - 4p Fluoreszenz nach stoßinduzierter Zweistufenanregung von 5s (Bedingungen wie Abb. A3) mit dem durch Rekombination bestimmten langsamen Abfall der Fluoreszenz.

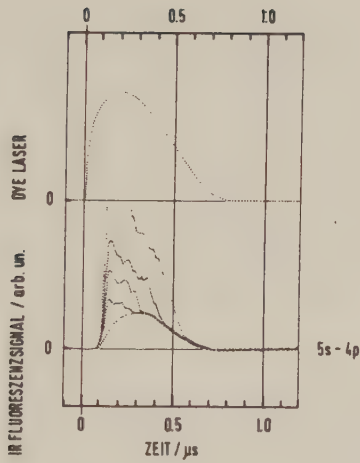


Abb. A5: Zeitabhängigkeit der beobachteten 5s - 4p Fluoreszenz nach stoßinduzierter Zweistufenanregung von 5s während des Pumpulses; Demonstration des 'superfluoreszenten' Verhaltens durch stark fluktuierendes Signal.

über dem direkt gepumpten 5s Zustand!).

(ii) Zeitabhängigkeit der IR Fluoreszenz:

- Abb. A3; für die stärksten beobachteten Übergänge (4f - 3d, 4d - 4p und 5s - 4p, 4p - 4s);
- langsamer Abfall der Fluoreszenz nach Pumplaserpuls-ende auf allen Übergängen (siehe vor allem Verlauf der 5s - 4p Fluoreszenz, Abb. A4);
- starke Ähnlichkeit des 4f - 3d und 4d - 4p Fluoreszenzverlaufs (auch innerhalb der Zeitspanne des Pumpulses);
- anfänglicher Verlauf des 5s - 4p Signals wegen 'superfluoreszentem' Verhalten nicht dargestellt (stark fluktuierender Signalverlauf unmittelbar nach Einsetzen des Pumpulses, siehe Abb. A5; Maximum etwa 50 mal größer als Maximum der 4d - 4p Fluoreszenz; beeinflusst dadurch auch anfängliche 4p - 4s Fluoreszenz).

Diskussion:

- Ursache des langsamen Fluoreszenzabfalls und Fluoreszenz sehr hoch angeregter Zustände: Rekombinationsmechanismen nach einer mehr oder weniger starken Ionisation des Metalldampfes nach auf der stoßinduzierten Zweistufenabsorption basierenden Anregung von 5s durch den Pumplaser;
- möglicher Ionisationsablauf: Assoziative Ionisation (siehe Gl. (3.79) mit $n_l = 5s$, durch Pumplaser bevölkert) als Erzeugungsmechanismus freier Elektronen; inelastische und superelastische Stöße dieser Elektronen mit 5s Atomen (letztere durch Pumpen auf dem roten Flügel des stoßverbreiterten 3s - 3p Übergangs im 1. Schritt des Zweistufenabsorptionsprozesses und durch den 'Energy Pooling'-Rückprozeß (Gl. 3.54a) bevölkert); denkbarer weiterer Verlauf der Ionisation wie in Kap. 3.3 beschrieben (Gl. (3.82), (3.83)); vor allem Energietransfermechanismen der Elektronen in Form von thermalisierenden Stößen (Gl. (3.85)) innerhalb der angeregten Atome (Ursache der Bevölkering von nicht direkt optisch

gepumpten Zuständen noch während des Pumpimpulses, siehe auch gleicher Verlauf der 4d-4p und 4f-3d Fluoreszenz);

- nach Ende des Pumpimpulses: langsame Rekombinationsprozesse (vor allem: (3.87) und (3.88)) und Strahlungsrelaxation der höheren Zustände;
- beobachtete Ionisationsphänomene anderer Autoren unter ähnlichen Bedingungen: siehe Stwalley et al. /KVS 77/ (Plasmaerzeugung nach Einstrahlung eines kontinuierlichen DyeLasers von einigen mW Leistung auf einem der 3p - 4d Übergänge in einem Na Dampf mit $n_{3s} = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) oder Tam und Happer /THa 77/ sowie Leslie et al. /LVM 77/ (mit ähnlichen Beobachtungen in einem Cs Dampf).

● A3.2 IR Fluoreszenz nach Anregung auf dem nahen Flügel der Na D_1 -Linie ●

Experimentelle Bedingungen:

- Bevölkerung von 3p durch auf dem nahen Flügel der D_1 -Linie eingestrahlten Pumpimpuls ($\lambda_{in} = 590.29 \text{ nm}$, 22.4% Absorption, $E_{abs} = 1 \text{ mJ}$, $n_{3s} = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$).

Ergebnisse:

(i) Sichtbares Fluoreszenzspektrum:

- Abb. A6
- Benutzung von Monochromator 2 aus Tab. 2.5 (Gitter: 1200 L/mm, Blazewellenlänge: 500 nm, Spaltbreite: 1.25 mm, Auflösung in 1. Ordnung: $\Delta\lambda_{1/2} \approx 50 \text{ Å}$) und Photomultiplier S20 als Nachweis;
- beobachtete Fluoreszenz rührt hauptsächlich von Übergängen $n1 - 3p$ her ($n1$: Zustände mit etwa der Energie zweier 3p Atome, starke Fluoreszenz; darüberliegende Zustände (maximal bis 6d), im Vergleich dazu schwache Fluoreszenz);
- 3p - 3s Fluoreszenz nur schwach (wegen 'Radiation Trapping' auf diesem Übergang 'diffundiert' diese

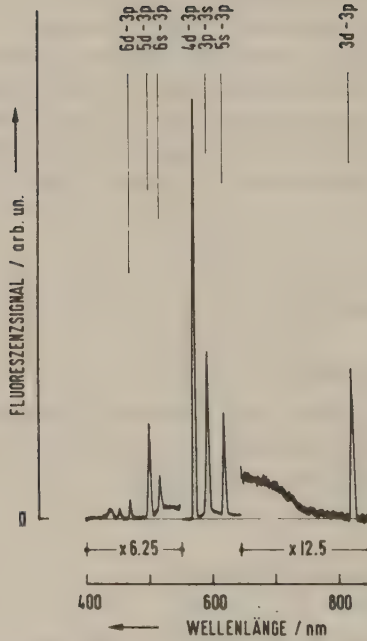


Abb. A6: Sichtbares Fluoreszenzspektrum nach Anregung auf dem nahen Flügel der D_1 -Linie (Bedingungen: $p_{\text{Tot}} = 2$ mbar mit $p_{\text{Na}}/p_{\text{Ar}} = 1/1$, $\lambda_{\text{in}} = 590.29$ nm, 22.4% Absorption, $E_{\text{abs}} = 1$ mJ, Boxcargate: 50 μ s)

Strahlung zum Großteil außerhalb des von der Nachweisoptik abgebildeten Anregungsvolumens aus der Dampfzone);

- breites Fluoreszenzband oberhalb und unterhalb der D-Linien: A-X und B-X Band des Na_2 Moleküls (Ursprung: Energietransfer angeregter 3p Atome auf Na_2 Moleküle im elektronischen Grundzustand /LFG 78/);
- Linien im Grünen um 435 und 450 nm höchstwahrscheinlich diffuse Bänder im Na_2 (Ursprung noch stark in Diskussion /AAK 77, Woe 78a, KVS 77, RKK 83/).

(ii) IR Fluoreszenzspektrum:

- Abb. A7;
- Vielzahl von IR Übergängen zwischen höheren Zuständen (höchster Zustand, von dem Fluoreszenz beobachtet wird: 6d; offensichtliche starke Bevölkering von 4d, 4f, aber auch 4p (trotz unkalibriertem Nachweis));

(iii) Einen detaillierten Einblick in die Ursache dieser Fluoreszenz liefert das zeitliche Verhalten der IR Fluoreszenz:

- Abb. A8; Zeitabhängigkeit der IR Fluoreszenz der kräftigsten Übergänge;
- deutlich erkennbares Ansteigen der Fluoreszenz noch während des Pumpimpulses, sowie dominanter Abfall der Fluoreszenz über viele μs nach Ende des Pumpimpulses;
- Fluoreszenz von 5s - 4p und 4d - 4p steigt sehr schnell nach Einsetzen des Pumpimpulses an und erreicht noch in der anfänglichen Phase des Pumpens maximale Intensität;
- Fluoreszenz von energetisch höheren Zuständen (4f - 3d, 5g - 4f (5d - 4f)) erreicht erst zum Ende des Pumpimpulses ihren maximalen Wert;
- Fluoreszenzverlauf von 4p - 4s und 4s - 3p wird von den jeweils darüber stattfindenden Übergängen beeinflusst;

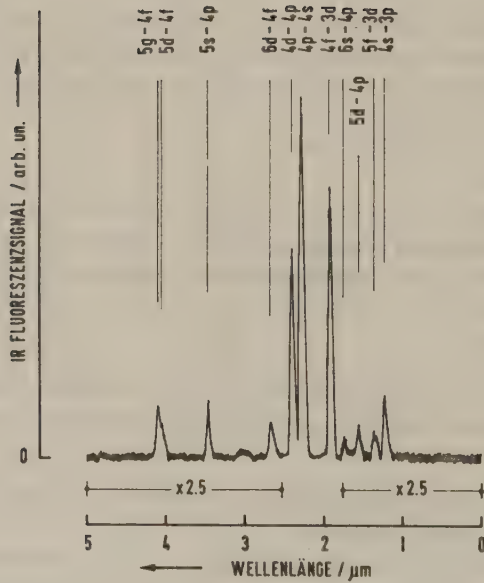


Abb. A7: IR Fluoreszenzspektrum nach Anregung auf dem nahen Flügel der D_1 -Linie (Bedingungen: wie Abb. A6, Boxcargate 8 μs)

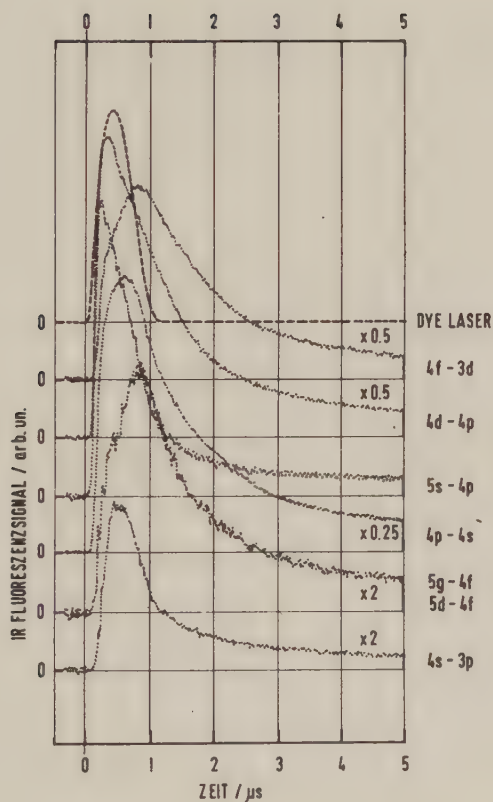


Abb. A8: Zeitabhängigkeit der beobachteten IR Fluoreszenz nach Anregung auf dem nahen Flügel der D_1 -Linie (Bedingungen: wie Abb. A6; Aufnahme mit TR-SA Kombination: gemittelt über 2048 Schüsse (4s - 3p, 5s - 4p, 5g - 4f (5d - 4f)), über 1024 Schüsse (4d - 4p, 4f - 3d), über 512 Schüsse (4p - 4s); Dwell-time: 0.01 μs).

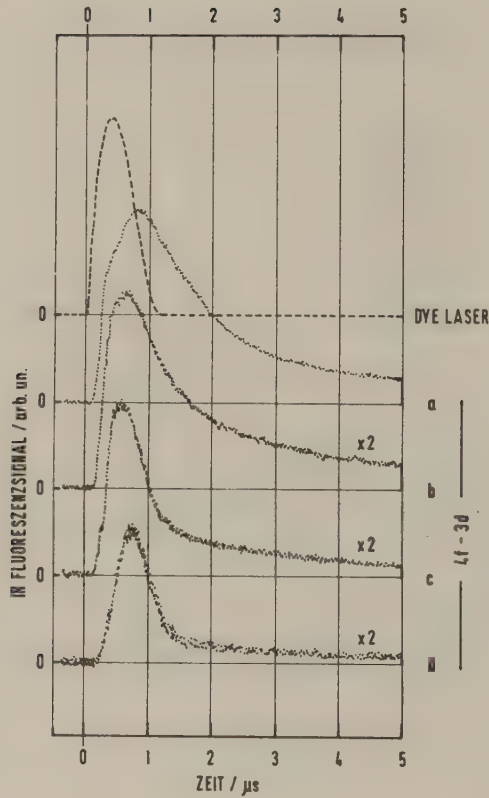


Abb. A9: Abhängigkeit des zeitlichen Verlaufs der 4f-3d Fluoreszenz von der absorbierten Pumpulsenergie des auf dem Flügel der D_1 -Linie eingestrahltten Lasers (Bedingungen wie A6; $E_{\text{abs}} = 1 \text{ mJ}$ (a), 0.5 mJ (b), 0.25 mJ (c), 0.1 mJ (d); gemittelt über 1024 Schüsse (a,b), 2048 Schüsse (c), 4096 Schüsse (d); Dwelltime: $0.01 \mu\text{s}$).

- Abb. A9 zeigt die Abhängigkeit des Fluoreszenzverlaufs des $4f-3d$ Übergangs bei verschieden starker Anregung des Na Dampfes (Variation der absorbier- ten Dyelaserpulsenergie);
- deutlich zu erkennen ist vor allem der Einfluß auf den Verlauf der Fluoreszenz dieses Übergangs zu späten Zeiten.

Diskussion:

- Ursachen der von höheren Zuständen ausgehenden Fluoreszenz (sowohl sichtbar als auch IR) ist die Besetzung dieser Zustände durch die in Kap. 3 diskutierten 'Energy Pooling'-Prozesse und Prozesse, die an Ionisations- und Rekombinationsmechanismen beteiligt sind (aufbauend auf hoher Dichte der durch den Pumplaser erzeugten $3p$ Atome sowie den detailliert in Kap. 3.3 vorgestellten Elektronenkreations- und Elektronenstoßprozessen);
- Unterschiede in anfänglichem Verhalten der Fluoreszenz von einerseits $4d-4p$, $5s-4p$ und andererseits $5g-4f$ ($5d-4f$), $4f-3d$ rühren dabei von der bei den beiden Zuständen $4d$, $5s$ vorgegebenen Möglichkeit der Besetzung durch den effizienten 'Energy Pooling'-Stoßprozeß (Gl. (3.52)) her, der offensichtlich bei der Population der darüberliegenden Zustände (wie z.B. $5g$, $5d$, $4f$) keine Rolle spielt;
- die ansteigende Elektronendichte während des Pumplaserpulses (siehe Kap. 3.3) sorgt dann im zeitlich späteren Verlauf für die Besetzung dieser höheren Zustände hauptsächlich durch Elektronenstoßprozesse (neben direkten Anregungsprozessen durch Stöße schneller Elektronen mit Atomen in tieferen Zuständen, wie z.B. Atome im $3p$ Zustand (Gl. (3.82)), insbesondere Mischen der Besetzung der höheren Zustände durch thermalisierende Stöße mit Elektronen (Gl. (3.85)) - man beachte vor allem etwa gleich starkes Fluoreszenzsignal von $4d-4p$ und $4f-3d$ im IR Spektrum, sowie ungefähr gleicher zeitlicher Verlauf nach Pumplulse, was wegen der kleinen Energiediskrepanz zwischen beiden Zuständen auf eine Gleichbesetzung beider Zustände durch

dieses Mischen hindeutet -);

- Depopulation der in der Anfangsphase durch 'Energy Pooling' besetzten 4d und 5s Zustände durch solche Prozesse noch während des Pumpaserpulses;
- Ursache der langsam abfallenden Fluoreszenzverläufe (bedeutend langsamer als die Lebensdauer der beteiligten Zustände) nach Beendigung des Pumpulses bei allen beobachteten Übergängen: langsame Elektronen-Ionen-Rekombinationsprozesse (Gl. (3.87)) und Strahlungsrelaxationsprozesse (Gl. (3.88), von weiter oben liegenden Zuständen);
- verändert man die Dichte der angeregten 3p Atome (durch geringere eingestrahlte Dyelaserintensität), so werden, wegen der starken Abhängigkeit der Ionisationsprozesse von der Dichte der atomaren Spezies, sich die mit diesen Prozessen verbundene Phänomene, wie beobachtet (siehe Abb. A9), weniger stark auf die Fluoreszenz von oberen Zuständen auswirken;
- da der Abfall der Fluoreszenz von 5s - 4p und der Anstieg der Fluoreszenz zwischen höheren Zuständen (z.B. 5g - 4f) etwa korreliert zu sein scheint, muß angenommen werden, daß ab diesem Moment Elektronenstoßprozesse dominierend in die im Dampf ablaufenden Prozesse eingreifen; diese Zeit (einige Hundert ns nach Beginn des Pumpulses) fällt etwa zusammen mit dem Ende des unter gleichen Bedingungen beobachteten $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulses (siehe Kap. 4.1.3, teilweise wurde auch hier ein 'superfluoreszentes' Verhalten zu Beginn der 5s - 4p Fluoreszenz beobachtet); als Vernichtungsmechanismen einer Besetzungsinversion zwischen diesen beiden Zuständen müssen also die oben genannten Populations- und Depopulationsprozesse durch Stöße mit Elektronen verantwortlich gemacht werden;
- da jedoch, wie beispielsweise aus dem anfänglichen Fluoreszenzverlauf von 5g - 4f zu entnehmen ist, schon zu früheren Zeiten Prozesse, durch Ionisationsmechanismen ausgelöst, höhere Zustände bevölkern, muß auch schon zu solchen frühen Zeiten von einer merklichen Beeinträchtigung mög-

licher auf 'Energy Pooling'-Stoßprozessen aufbauender Laserprozesse ausgegangen werden. Dies könnte das Nichterscheinen der $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ und $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ Laserübergänge im Experiment, sowie die Diskrepanz in den Ausgangsleistungen des beobachteten $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laserpulses zwischen Experiment und Modell erklären; siehe Kap. 4.1.3.

- A4: $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Lasertätigkeit bei Pumpwellenlängen zwischen 582 und 584.5 nm. ●

Wie bei der in Kap. 4.1 vorgestellten Lasertätigkeit im Natriumdampf, basiert auch die bei diskreten Anregungslinien im Wellenlängenbereich zwischen 582 und 584.5 nm beobachtete IR Laseremission auf dem Übergang $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$. Abb. A10 zeigt das Anregungsspektrum. Auch hier beobachtet man wie bei den dort diskutierten direkten, optischen Anregungsmechanismen des oberen Laserniveaus Laserpulse, die nach dem Erreichen der Schwelle dem Pumppulsverlauf folgen (siehe Abb. A11). Ein Vergleich mit der auf dem 'Energy Pooling'-Pumpprozess aufbauenden Lasertätigkeit bei Anregungswellenlängen um die Na D-Linien zeigt hier bei gleichen Bedingungen ein etwa um einen Faktor 100 schwächeres Lasersignal. Bei einer Dampfänge von 3.4 cm ist diese Laserstrahlung nur bei Dampfdrucken oberhalb etwa 1 mbar und nur mit den Resonatoraufbauten 2 und 4 (siehe Tab. 2.3) zu beobachten.

Über mögliche Pumpmechanismen, die zu dieser Laserstrahlung führen, läßt sich zur Zeit lediglich spekulieren. Denkbar sind: Bevölkering von $5s_{1/2}$ nach Energietransferprozessen von angeregten Molekülen (im A oder B Zustand nach Einphotonenanregung) auf das Atom im Grundzustand (danach in $3p$) gefolgt vom 'Energy Pooling'-Pumpprozess (Gl. (3.52)), oder nach Energietransferprozessen von angeregten Molekülen (in höheren Zuständen nach Zweiphotonenanregung im Molekül) auf das Atom im Grundzustand (danach in $5s$).

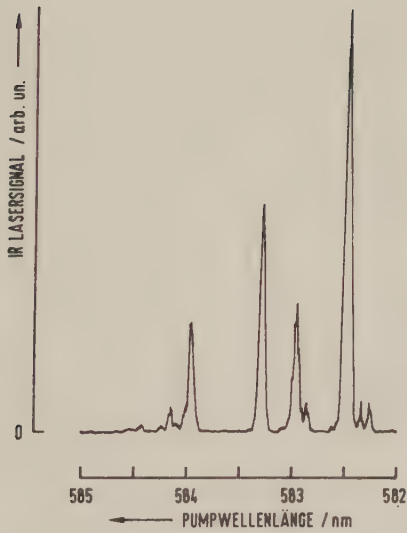


Abb. A10: Anregungsspektrum der $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laseremission auf der blauen Seite der Na D-Linien (Bedingungen: Resonator 4, $l_{\text{Dampf}} = 3.4$ cm, $p_{\text{Tot}} = 2$ mbar mit $p_{\text{Na}}/p_{\text{Ar}} = 1$ mbar, $E_{\text{in}} = 3$ mJ).

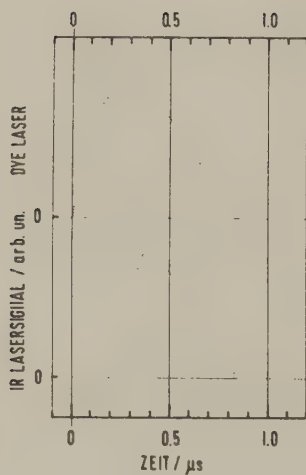


Abb. A11: Zeitabhängigkeit der $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ Laseremission
 (unten) im Vergleich mit dem Pumpuls (oben)
 (Bedingungen: $\lambda_{in} = 582.45 \text{ nm}$, sonst wie Abb. A10).

● A5: For the english speaking reader ●

Infrared Laser Emission in Two-Photon Pumped Sodium Vapour

Abstract. We report infrared laser emission in the region of 3 to 5 μm from sodium vapour optically pumped by a pulsed dye laser with wavelengths ranging from 585 to 610 nm. Two-photon excitation processes are believed to be responsible for the primary excitation. Both molecular transitions (4 to 5 μm) between high lying states, and atomic transitions ($5^2S_{1/2} - 4^2P_{3/2,1/2}$ at 3.41 μm) have been identified.

PACS: 42.55, 33.80

Electronic transition lasers of optically pumped homonuclear diatomic molecules (dimers) in the gas phase are well known to be ideal for producing narrowband induced radiation [1]. Applications in spectroscopy and kinetics are possible with a variety of diatomic pulsed and cw optically pumped lasers [2]. Laser oscillation has been reported for broad spectral ranges in the near uv, in the visible and near ir. The sodium dimer, in particular, has attracted great interest because of its stability and ease of production. Laser emission between the lowest electronic states $B^1\Pi_g - X^1\Sigma_g^+$ and $A^1\Sigma_g^+ - X^1\Sigma_g^+$ has been studied [3-5].

We report here first observations of infrared laser lines in the wavelength region between 3 and 5 μm from sodium vapour optically pumped by a pulsed dye laser. Experimental evidence indicates that this laser emission arises a) from transitions between the higher lying molecular states and b) from the $5^2S_{1/2} - 4^2P_{3/2,1/2}$ transitions in atomic sodium. Two-photon absorption is felt to be responsible for the production of the initial population inversion.

1. Experimental Set-Up

A schematic of the experimental set-up is shown in Fig. 1. A flashlamp-pumped Rhodamin 6G dye laser (Lambda Physik 3000 L) is used to pump the sodium vapour. Typically the pulse energy is ~ 80 mJ, the pulse duration $\sim 1 \mu\text{s}$ and the repetition frequency

5-10 Hz. The linewidth is 0.3 nm using an interference filter only. It can be reduced to less than 0.01 nm with an additional Fabry-Perot etalon. The dye laser wavelength (pump wavelength) is measured with a 0.25 m grating monochromator with an accuracy of approximately ± 0.3 nm. By tuning the etalon a pump-wavelength difference of better than 0.01 nm can be determined. The output beam of the dye laser has a diameter of 4 mm. The sodium vapour is produced in a critically operated heat pipe oven, which uses argon as a buffer gas to control the vapour pressure of the sodium, thereby preventing the fogging of the ir laser mirrors. The latter form the end seals of the heat pipe.

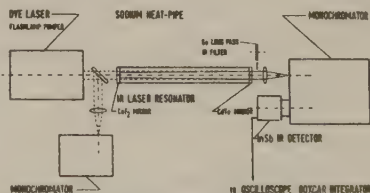


Fig. 1. Schematic experimental set-up of the laser system. The characteristics of the ir optics are: CaF₂ entrance mirror (flat) transmission between 590 and 610 nm is 45 to 80%, reflectivity between 4.2 and 5 μm is 99% and 55% at 3.4 μm . Concave (5 m radius) CdTe output mirror reflectivity between 4.55 and 5.5 μm is 95% and 55% at 3.4 μm . NaCl and CdTe lenses are used to focus the ir beam into the monochromator and detector, respectively. A long pass Ge filter can be inserted to cut off wavelength below 4.4 μm .

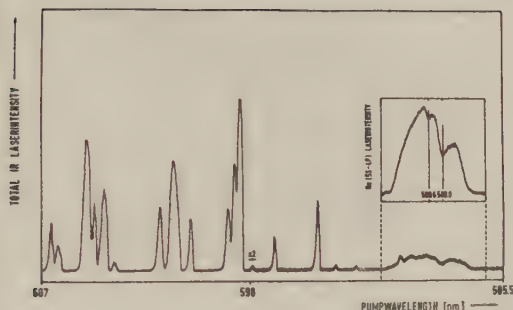


Fig. 2. Excitation spectrum: Total multiline ir laser intensity as a function of the exciting dye laser wavelength (nonlinear wavelength scale) with a bandwidth of the dye laser ~ 0.3 nm. Inserted picture: IR laser intensity resulting only on $5^2S_{1/2} - 4^2P_{3/2,1/2}$ laser transitions in atomic sodium as a function of pump wavelength near the sodium D-lines

The free inner diameter of the tube is 20 mm and its length 78 cm. The sodium vapour zone has a length of about 30 cm. The pipe is operated at a temperature of $\sim 460^\circ\text{C}$, corresponding to a sodium vapour pressure of 2 mbar. Under these conditions the partial pressure of Na_2 dimers is approximately 4% of the monomers [6]. The input mirror of the infrared resonator is a flat CaF_2 mirror with a transmission of 70% at 600 nm and a reflectivity of 99% at $5\mu\text{m}$, whereas a 5 m dielectric coated CdTe mirror with a reflectivity of 95% serves as the output mirror. The coating of the ir laser mirrors was primarily designed to a) allow yellow light to enter the heat pipe through the input mirror and b) to achieve lasing conditions in the 4 to $5\mu\text{m}$ ir region (see caption of Fig. 1). The wavelength of the ir output is measured with a 0.5 m Czerny Turner monochromator. The wavelength reproducibility of this monochromator was approximately 0.7 cm^{-1} at $3.4\mu\text{m}$, the minimum halfwidth used was of the same order of magnitude. The ir output pulses were detected by a liquid- N_2 cooled InSb-detector (time constant better than 100 ns, $D^* \approx 10^{11}\text{ cm Hz}^{1/2}/\text{W}$ at $5\mu\text{m}$). Both, dye laser and ir output pulses could be viewed by an oscilloscope. In addition the ir intensity could be measured by a boxcar integrator (PAR Model 162), which is triggered synchronously with the dye laser.

2. Results and Discussion

For a large number of discrete pump wavelengths in the range of 585 to 610 nm we find optically stimulated ir laser emission in the region of 3 to $5\mu\text{m}$, if and only if the laser resonator is properly aligned. The radiation is also highly collimated to less than 5 mrad (5 mm beam diameter in a 1 m distance from the output mirror). Thus it may be concluded that our experimental set-up acts as a ir laser. Our observations may be classified into three categories:

2.1. Two-Photon Pumped Molecular IR Laser Lines

Clearly in the excitation spectrum (Fig. 2) 18 distinct excitation lines, spread over the whole range of observation, can be seen. Their width reflects the linewidth of the dye laser radiation. Reduction of the dye laser bandwidth reduces their widths accordingly, as seen when the etalon is inserted in the dye laser. Simultaneously, the number of lines increases drastically, partially overlapping. Also the output power increases by two orders of magnitude, when reducing the bandwidth of the dye laser by a factor of 30, although the total pumping power is decreased. In addition, the narrower pumping linewidth substantially improves the stability and reproducibility of the ir laser emission.

The number of lines in this excitation spectrum indicates a pumping process involving sodium dimers. This assumption is underlined by the fact that each excitation line leads to a multi-line ir laser oscillation. Two typical output spectra are shown in Figs. 3 and 4. The manifold of the output spectra can only be understood in terms of molecular transitions. Figure 3 in particular closely resembles the resonance fluorescence spectrum of a dimer, indicating a vibrational spacing of around 102 cm^{-1} . In spite of the apparently simple structure of the spectrum shown in Fig. 3, a number of problems prevents us at present from a clear assignment of these spectra to specific molecular transitions. Since the emission is in the ir we have to consider high lying molecular states, whose structural constants are not well known [7]. Furthermore, laser dynamics and mode competition may suppress certain allowed transitions. In addition, more than one initial rotational state may be populated either by the primary optical pumping process or by collisional redistribution of states. This is illustrated by the complexity of the ir laser spectrum in Fig. 4. The latter fact becomes apparent in a timedependent study. An example is

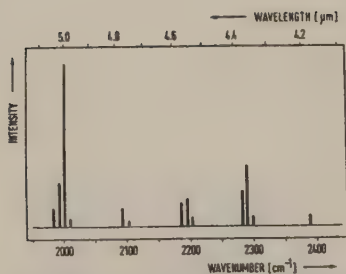


Fig. 3. Multiline ir laser output spectrum in molecular sodium, resulting on two-photon excitation at a pump wavelength of 610 nm. Intensity of the white lines have been multiplied by a factor of 10 with respect to the solid lines

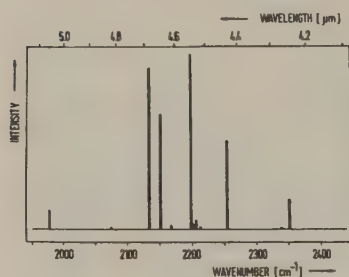


Fig. 4. Same as Fig. 3 but with a pump wavelength of 602 nm

presented in Fig. 5 for two different ir emission lines when exciting with narrowband 605 nm dye laser radiation. While the output intensity at 4.591 μm essentially follows the pump-laser pulse, the emission at 4.891 μm is clearly delayed by approximately 500 ns. For comparison we note that the collision time for rotational redistribution of molecular states with typical cross section of $100 \text{ \AA}^2$, say, leads at our conditions to a collision time of 400 ns. The above experimental observations strongly suggest the following explanation of the laser process, which is illustrated using the termscheme of sodium (Fig. 6). While ir laser emission in the visible and near ir as a consequence of transitions between B and X or A and X electronic states is well known [3-5], emission in the 4 to 5 μm range can only arise from transitions between vibrational-rotational levels of higher electronic states. The excitation of these high lying molecular states can be achieved by a parity conserving two-photon absorption process from the $X^1\Sigma_g^+$ ground state (marked pump ① in Fig. 6). These high lying electronic states

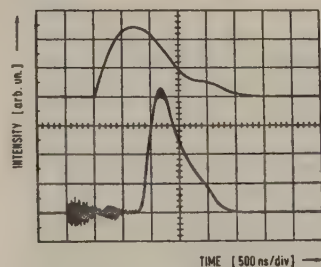
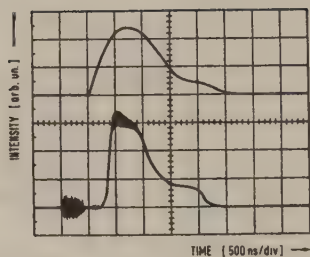


Fig. 5. Time dependence of two different molecular sodium ir laser transitions. The wavelength for the ir output pulse (lower trace) is 4.591 μm (top picture) and 4.891 μm (bottom), while the wavelength of the pump pulse (upper trace) is 605 nm in both cases

have been subject to detailed studies in the last few years [8-10], which lead to the observation of several hitherto unknown electronic energy levels of even parity. While Carlston et al. [10] used a two-step excitation process with polarisation labeling to identify one $^1\Pi_g$ and two $^1\Sigma_g^+$ states, Woerdman [8, 9] reports a direct two-photon absorption experiment yielding a similar variety of excitation lines as in the present experiment for the same range of pumping wavelengths. Woerdman observes fluorescence in the visible, while in our experiment ir laser emission is detected, so that no direct comparison of the excitation spectra can be made. The two-photon excitation process is supported by nearly resonant intermediate vibronic levels of the $A^1\Sigma_u^+$ state. This and the selection rules explain the relative simplicity of the excitation spectrum (Fig. 2) in contrast to single photon absorption bands $X-A$ in Na_2 [11]. Thus the upper laser level probably belongs to one of the electronic states mentioned above [8-10]. For lower laser levels one may consider vibrational-rotational states of the

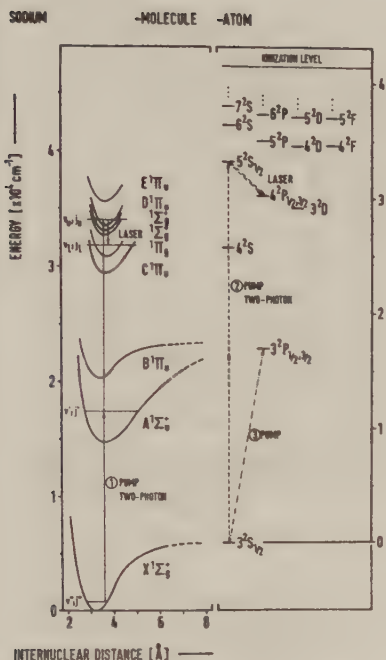


Fig. 6. Energy level diagram of molecular and atomic sodium, indicating three different pump mechanisms for ir laser transitions

$C^1\Pi_u$ ungerade state. As illustrated in Fig. 6 this would correspond to relatively high vibrational quantum numbers. We note in passing that the observed vibrational spacing in Fig. 3 of 102 cm^{-1} compares well with the vibrational spacing in the assumed lower laser level $C^1\Pi_u$ of 102 cm^{-1} for $v=16$ or 17 [7].

The above explanation obtains additional support by a relative measurement of the total multiline output intensity as a function of the pump pulse energy above threshold ($P_{\text{threshold}} \approx 4\text{ mJ}$). The log-log plot in Fig. 7 illustrates a nearly quadratic dependence with slightly decreasing slope at higher pulse energies. The quadratic dependence is expected for the two-photon pumping process, while details of the laser dynamics and mode matching conditions apparently decrease the slope at higher energies.

The absolute total multiline ir laser output power has been estimated by using manufacturers data of the ir

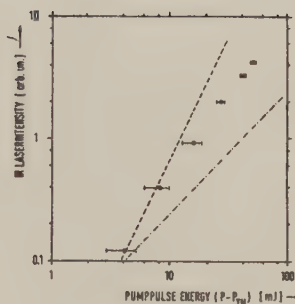


Fig. 7. Two-photon pumped molecular sodium total multiline output intensity versus dye laser pump pulse energy above threshold (double logarithmic plot, pump wavelength 597.5 nm , dye laser bandwidth: 0.3 nm). Experimental values $\circ$ may be compared with the expected quadratic dependence (----) in contrast to linear slope (-----)

detector to be approximately 2 mW at a pump wavelength of 597.5 nm and an average pump power of 40 kW . Narrowing the pump linewidth to 0.01 nm increases this value by two orders of magnitude.

2.2. $5^2S_{1/2} - 4^2P_{3/2,1/2}$ Laser Transition in Atomic Sodium Pumped by Resonant Two-Photon Excitation

In addition to the multiline ir emission between 4 and $5\text{ }\mu\text{m}$, we observe laser oscillation at $3.41\text{ }\mu\text{m}$. Figure 8 shows an output spectrum with a doublet structure clearly resolved. The observed wavelengths of these lines agree within the limits of our experimental error ($\pm 0.0016\text{ }\mu\text{m}$) with the well-known transitions $5^2S_{1/2} - 4^2P_{3/2}$ and $4^2P_{1/2}$ in atomic Na (see also Fig. 6). The term difference $4^2P_{3/2} - 4^2P_{1/2}$ is 5.6 cm^{-1} [12]. We observe this doublet for one particular excitation line at around 602 nm . Figure 9 shows a section of the excitation spectrum in this wavelength range as measured with a dye laser linewidth of 0.01 nm . As in Fig. 2 the total ir laser output is monitored. If only $3.41\text{ }\mu\text{m}$ radiation is detected the broad structure on the left side of the Fig. 9 disappears, thus indicating a molecular origin for the latter with multiline laser emission in the 4 to $5\text{ }\mu\text{m}$ region. By comparison with the results of Woerdman [Ref. 8, Fig. 2] we identify the narrow excitation line in Fig. 9 as the direct resonant two-photon excitation line ($2 \times 602.23\text{ nm}$) of $3^2S_{1/2}$ to $5^2S_{1/2}$ (marked as pump $\odot$ in Fig. 6), while the broad structure clearly corresponds to two or more overlapping two-photon excitation lines in the molecule. It should be recalled that the molecular excitation lines, if not overlapping, usually reflect the dye laser linewidth

(0.01 nm in this case), while the atomic two-photon transition apparently is narrower by a factor of two which possibly may be understood in terms of intensity considerations for the two-photon process. As indicated in Fig. 9, this atomic ir laser emission is more than a factor of ten times less intense than the molecular phenomena described in the previous section in spite of the higher atom density. This underlines the strength of the molecular two-photon pumping process which in contrast to the atomic transition is supported by near resonant intermediate states. In addition, the coating of the laser mirror was not optimised for the wavelength of 3.4 μm . The $5^2S_{1/2} - 4^2P_{3/2,1/2}$ transition after two-photon excitation reported here by observation of ir laser radiation has previously been seen without a laser configuration in optical stimulated emission by Hartig [13]. It should, however, be noted at this point that in contrast to [13] the laser transitions reported in the present work are only observed when the pumping laser is tuned exactly on the two photon resonance and the output corresponds precisely to the term difference of the atomic levels involved. The same applies to the molecular ir radiation reported in Sect. 2.1. Thus, the phenomena discussed in the present paper have to be distinguished from various nonlinear phenomena observed in metal vapours such as wave mixing [13, 14] or stimulated Hyper-Raman scattering [15], which usually are observed at much higher intensities than that used here. However if the pumping laser wavelength is detuned off the $3^2S - 5^2S$ two-photon resonance by some cm^{-1} in the present experiment a very weak signal (at least two orders of magnitude less than the one in Fig. 9) can be seen, which may be attributed to such nonlinear processes.

2.3. $5^2S_{1/2} - 4^2P_{3/2,1/2}$ Laser Transition Pumped by Collisional Processes Involving Na(3^2P) Atoms

The same 3.4 μm ir laser radiation is observed when the pumping dye laser is tuned near the sodium D-lines. This is illustrated in Fig. 2 (see especially the inserted picture). Recalling the relatively high vapour pressure (2 mbar) one may explain the broad structure in the excitation spectrum (Fig. 2) at $(590 \pm 2.5) \text{ nm}$ by excitation of the $3^2P_{1/2,3/2}$ states of atomic Na. The apparent reduction of the laser intensity at exact resonance with either doublet may be understood by the total absorption of the pump laser beam within the first few millimeters of the sodium vapour.

The excitation mechanism of the upper laser level $5^2S_{1/2}$ is not immediately obvious and certainly cannot be explained by direct two-photon excitation as previously, since the energy of two photons with 590 nm is far above this level. However, excitation of

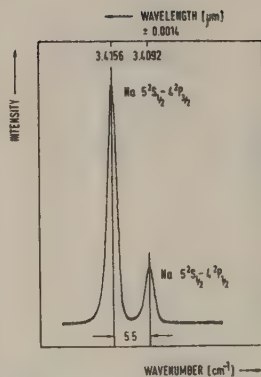


Fig. 8. IR laser oscillation in atomic sodium, resulting from transitions between $5^2S_{1/2}$ and $4^2P_{3/2,1/2}$ after two-photon excitation at a pump wavelength of 602 nm

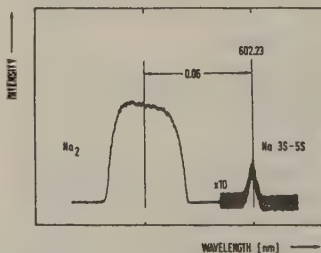
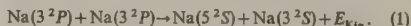


Fig. 9. Excitation spectrum around 602 nm: Total multiline ir laser intensity as a function of the exciting dye laser wavelength (nonlinear wavelength scale) with a bandwidth of the dye laser $\sim 0.01 \text{ nm}$

the $5^2S_{1/2}$ state involving excited Na(3^2P) atoms has been observed and discussed by a number of authors using spontaneous fluorescence in the visible and uv for detection [16-18]. A so called energy pooling is felt responsible for $5^2S_{1/2}$ excitation according to the scheme (marked as pump ③ in Fig. 6)



However, processes of this type are still under discussion [19]. Ionization processes as intermediate steps [20] or laser assisted collisions [21] cannot be completely excluded and a final conclusion cannot be given at present.

3. Conclusion

IR laser emission in optically pumped sodium vapour in the 4 to 5 μm (molecular origin) and at 3.41 μm (atomic origin) has been demonstrated.

Since two-photon excitation is responsible for the pumping process the conversion efficiency of this laser-system is poor. However, in the present work no optimization of resonator configuration, mode matching, pressure and temperature condition has been attempted toward practical applicability as an ir laser source. Furthermore, reduction of the pumping laser linewidth may drastically increase the output power. In view of this and the fact that the laser emission follows the power of the exciting laser pulse (Fig. 5) one may even speculate whether cw operation could be achieved for the molecular system. Spectroscopic application of the processes studied in the present work seems also promising for the investigation of high lying Na_2 -states for which relatively few data are known. In connection with time-dependent studies and pressure variation, important kinetic data may also be obtained (see e.g. [2]).

Acknowledgements. Financial support by the "Sonderforschungsbereich 91, Energy transfer in atomic and molecular collisions, Kaiserslautern" sponsored by the "Deutsche Forschungsgemeinschaft" is gratefully acknowledged.

References

1. H. Welling, B. Wellegehausen: In *Laserspectroscopy III*, ed. by J.L. Hall and J.L. Carlson. Springer Series in Opt. Sci. 7 (Springer, Berlin, Heidelberg, New York 1977) pp. 365-369
2. J. Brook Koffend, R.W. Field, D.R. Guyer, S.R. Leone: In *Laserspectroscopy III*, ed. by J.L. Hall and J.L. Carlson. Springer Series in Opt. Sci. 7 (Springer, Berlin, Heidelberg, New York 1977) pp. 382-393
3. B. Wellegehausen, S. Shadin, D. Friede, H. Welling: *Appl. Phys.* **13**, 97-99 (1977)
4. M. A. Hennesian, R.L. Herbst, R.L. Byer: *J. Appl. Phys.* **47**, 1515-1518 (1976)
5. H. Itoh, H. Uchiki, M. Matsuoka: *Opt. Commun.* **18**, 271-273 (1976)
6. M. Lapp, L.P. Harris: *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **6**, 169 (1966)
7. K.P. Huber, G. Herzberg: *Molecular Spectra and Molecular Structure, IV. Constants of Diatomic Molecules* (Van Nostrand, New York 1979)
8. J.P. Woerdman: *Chem. Phys. Lett.* **43**, 279-282 (1976)
9. J.P. Woerdman: *Phys. Lett.* **69 A**, 18-20 (1978)
10. N.W. Carlson, F.V. Kowalski, R.E. Teets, A.L. Schawlow: *Opt. Commun.* **29**, 302-306 (1979)
11. P. Kusch, M.M. Hessel: *J. Chem. Phys.* **63**, 4087-4088 (1975)
12. S. Bashkin, J.O. Stoner, Jr.: *Atomic Energy Levels and Grotian Diagrams*, Vol. II (North Holland, Amsterdam 1978)
13. W. Hartig: *Appl. Phys.* **15**, 427-432 (1978)
14. H.E. Schöne: *Dissertationsschrift*, Universität Bielefeld (1979)
15. D. Cotter, D.C. Hanna, W.H.W. Tuttlebee, M.A. Yuratich: *Opt. Commun.* **22**, 190-194 (1977)
16. G.H. Bearman, J.J. Leventhal: *Phys. Rev. Lett.* **41**, 1227-1230 (1978)
17. M. Allegrini, G. Alzetta, A. Kopystynska, L. Moi, G. Orriols: *Opt. Commun.* **19**, 96-99 (1976)
18. M. Allegrini, G. Alzetta, A. Kopystynska, L. Moi, G. Orriols: *Opt. Commun.* **22**, 329-332 (1977)
19. J. Krasinski, T. Stacewicz, C.R. Stroud, Jr.: *Opt. Commun.* (to be published) (1980)
20. T.B. Lucatorto, T.J. McIlrath: *Phys. Rev. Lett.* **37**, 428-431 (1976)
21. P.L. DeVries, K.S. Lam, T.F. George: In *Electronic and Atomic Collisions*, ed. by N. Oda and K. Takayanagi (North Holland, Amsterdam 1980) pp. 683-695

Infrared Laser-Emission Study in a Resonantly Excited Sodium Vapor

Abstract. We report on a study of time dependence of ir laser emission at $3.41\text{ }\mu\text{m}$ in a dense Na vapor that is resonantly excited to the 3^2P levels by a flashlamp pumped dye laser. Energy-pooling collisions (excitation transfer) between excited atoms create a large population inversion among the $5^2S_{1/2}$ and $4^2P_{3/2}$ states which is destroyed by electron collisions as a result of subsequent plasma formation. The ir laser emission may serve as a new diagnostic tool to follow the time evolution of such media.

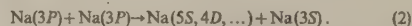
PACS: 34.50 H, 42.55 Hq, 52.50 Jm

The study of alkali vapors by laser diagnostic techniques is of broad general interest. In particular, their response to resonant excitation by a strong laser pulse has been the subject of a considerable amount of recent work, motivated not only by an interest in understanding basic atomic and molecular mechanisms involving excited atoms [1] but also by the search for new laser systems based on energy transfer mechanisms [2]. A variety of laser schemes is considered for extraction of energy that is stored in the resonance line of alkali atoms [3] and it is one aim of the present study to contribute towards these efforts. Also, the substantial ionization in dense ($n > 10^{15}\text{ cm}^{-3}$) vapors discovered by Lucatorto and McIlrath [4] is of current interest. Measures et al. [5] have developed a computer model (LIBORS) to describe this plasma formation. But the mechanisms involved, in particular the initial production of electrons ("seed" electrons), are not yet fully understood. Usually associative ionization [6]



is considered to be initially the main source of electrons, possibly enhanced by one or more laser photons [7]. Associative [6] Penning [8] and photo-ionization

involving higher excited levels may also be of importance [4]. The electrons are then assumed to be heated by superelastic collisions with atoms in the $3P$ state as observed even in a cw excited Na beam [8]. During the further evolution the hot electrons themselves may ionize the atoms, and the electron density may increase progressively up until the total "ionization burnout". Higher atomic levels can be excited [5] by inelastic electron collisions but in the early time domain this is only possible due to the rather selective energy pooling process



Cross sections given in the literature differ by orders of magnitude [1]; thus, the role of highly excited states in the early stage of the plasma formation is still disputed [8] and is often completely neglected [5].

Spectroscopic studies of resonantly excited dense atomic vapors have so far concentrated on visible [1, 9] and uv fluorescence and absorption studies [4]. In this work we report a time resolved investigation of $3.41\text{ }\mu\text{m}$ ir laser emission from the $5^2S \rightarrow 4^2P$ transition in Na vapor observed after excitation of the $3P$ resonant state by a flashlamp pumped dye laser. The population inversion gives direct evidence of an efficient and selective mechanism for populating the higher levels. It may be used as a novel diagnostic tool but also illustrates the possibilities to utilize energy pooling processes for new laser schemes.

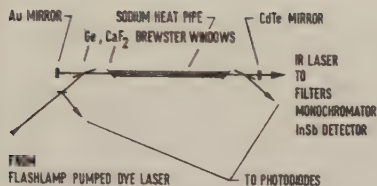


Fig. 1. Schematic experimental set-up

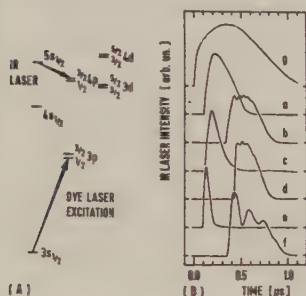


Fig. 2. (A) Energy level diagram of atomic sodium. (B) Experimental pulse traces of the $5^2S_{1/2} - 4^2P_{3/2}$ ir laser emission for excitation on the red wing of the Na D_1 line: (a) vapor length 1 cm, density $1.8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, detuning 0 nm, absorbed dye laser energy 0.74 mJ; (b) 0.074 mJ, otherwise as (a); (c) 1 cm, $4.4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, 0.4 nm, 0.46 mJ; (d) 0.046 mJ, otherwise as (c); (e) 1 cm, $2.9 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, 1.8 nm, 0.96 mJ; (f) 1 cm, $1.1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, 0 nm, 0.13 mJ. For comparison the exciting dye laser pulse is also shown (g)

1. Experimental Set-Up

The experimental setup (Fig. 1) is similar to that used in previous [10] ir laser-emission studies of two photon pumped Na₂ and Na. Briefly, an Ar buffered Na heat pipe of 1.6 cm inner diameter is sealed with CaF₂ Brewster windows. It is mounted inside an ir resonator of 135 cm length formed by a gold mirror (3 m radius) and a dielectrically coated CdTe mirror (10 m radius, 30% reflectivity at 3.4 μm).

The dye laser (pulse duration ~1 μs, bandwidth ~0.04 nm, pulse energy up to 15 mJ and beam waist ~0.3 cm) is coupled into the ir resonator and out of it by two Ge plates set at Brewster's angle for ir, and reflecting 83% of the yellow s-polarized pump pulse which is approximately mode matched with the ir beam waist, the latter having a slightly smaller waist. Both, the input pump laser beam and the light transmitted through the heat pipe can be monitored by photodiodes. The ir laser emission is detected by a fast

(50 ns) cooled InSb-detector. Filters and a 0.5 m grating monochromator are used for the wavelengths measurements. The signals are recorded with an oscilloscope or processed by a digitizer-averager combination.

2. Results and Discussion

When the dye laser is tuned to the center or to the near wings of the D -lines we observe ir laser emission on the $3.415 \mu\text{m } 5^2S_{1/2} \rightarrow 4^2P_{3/2}$ line, characterized by an output peak power of up to some 100 mW, high collimation (<5 mrad) and a drop of output power by several orders of magnitude when the ir resonator is misaligned. We observe the ir laser pulses, as illustrated for some typical cases in Fig. 2, under a broad range of experimental conditions: for Na densities from $n_0 = 10^{14}$ to 10^{17} cm^{-3} , for a vapor zone length from $l = 1$ to 30 cm, at critical or subcritical operation with Ar admixtures, for pump laser irradiance from 500 to 10^6 W/cm^2 and dye laser detuning off exact resonance up to 15 nm (for $l = 30 \text{ cm}$ and $n_0 = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ with 500 mbar Ar buffer). For resonant excitation and high absorption we also observe weak lasing at $3.408 \mu\text{m } (5^2S_{1/2} \rightarrow 4^2P_{1/2})$ and at $2.206 \mu\text{m}$ (cascading $4^2P_{3/2} \rightarrow 4^2S_{1/2}$). In contrast, we never see laser emission from the $4^2D \rightarrow 4^2P$ lines (2.33 μm), while the $4^2P \rightarrow 3^2D$ (9.15 μm) cannot be detected by our ir detector. A systematic description of the details will be given in a future publication [11].

All processes involved in the creation and destruction of the ir laser emission are interrelated, and are usually nonlinear and rather complicated: starting with the nontrivial absorption process for a multimode laser beam tuned to a resonance line [7] and ending with the possibility of runaway ionization [5]. Thus, to obtain a more quantitative insight into the process we therefore have chosen to study the onset time t_{on} of the ir laser under conditions of moderate pumping. By absorbing only 15% of the dye laser tuned to the red wing of the self-broadened Na(D_1) line we excite a defined fraction of the Na atoms into the 3^2P states and keep the initial absorption in the linear regime (detuning ~0.4 nm, critically operated heat pipe with $l = 1 \text{ cm}$ and $n_0 = 4.4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$). We have undertaken a systematic study of t_{on} by varying the dye laser irradiance from 10^4 to $1.6 \times 10^5 \text{ W/cm}^2$. Figure 3 shows the results for t_{on} as a function of the energy E absorbed during the whole dye laser pulse. Under the conditions described one may hope that the early time domain and thus t_{on} is only moderately influenced by ion formation. Figure 3 also shows the ir laser cutoff time t_{off} for which the latter statement certainly does not hold. Apparently, the onset time decreases rapidly

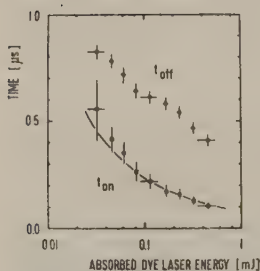


Fig. 3. Onset time t_{on} and cutoff time t_{off} (10% of maximum) of the $5^2S_{1/2} - 4^2P_{3/2}$ ir laser pulse versus absorbed dye laser pulse energy (vapor length 1 cm, density $4.4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, detuning on the red wing of the D_1 line 4 nm). Onset time predicted by the model (—)

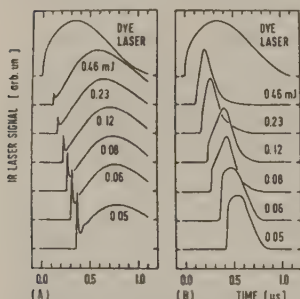


Fig. 4. Time dependence of the $5^2S_{1/2} - 4^2P_{3/2}$ ir laser signal: Model prediction (A), Experiment (B). Conditions: Absorbed energy given in the figure, otherwise as Fig. 3

from 560 ns at threshold and levels out at 100 ns for higher absorbed power. In contrast, the total ir pulse duration is relatively independent of E . The error bars show the statistical variations from laser shot to shot, indicating that t_{on} , due to its dependence on cavity losses, is very sensitive to fluctuations in the medium. On the other hand, t_{off} is much more stable and we suspect the cutoff to be caused by a rapid change in the kinetics of the atomic vapor.

Based on energy pooling, (2), as a selective pump source for the $5S$ and $4D$ levels we have modeled the kinetics of the medium by a set of rate equations. We have excluded all ionization phenomena and electron collisions in the hope to predict the early history of the system and thus of t_{on} adequately. We have included the 11 atomic levels indicated in Fig. 2 and up to 8 potential laser transitions with their respective photon

rate equations. We use the most recent energy pooling rate constants from Huennekens and Gallagher [1], spontaneous decay rates from Heavens [12] and include fine structure transitions by adopting the known $3P$ mixing rates (taken from [1]) for all other levels. We allow for radiation trapping of the $3^2S \rightarrow 3^2P$ transition and we derive the time dependent $3^2S_{1/2} \rightarrow 3^2P_{1/2}$ excitation probability from the measured absorbed energy. Such a model is clearly oversimplified not only because ionization and other unknown collision processes which may destroy the population inversion are neglected but also because we ignore any spatial inhomogeneities and fluctuations in the small active volume. The latter is determined by the ir resonator configuration and the effective length of the vapor zone and is thus assumed to be independent of the power of the pump laser. All unknown quantities determining gain and losses such as active volume, actual linewidth of the transition and cavity lifetime are incorporated into one fit parameter representing the threshold population inversion. We choose this free parameter in such a way as to fit the onset time t_{on} at absorbed energy $E = 0.115 \text{ mJ}$.

The resulting computed $t_{on}(E)$ is displayed in Fig. 3 (full line) and gives a surprisingly good description of the observed onset times. The model also predicts a variety of other ir transitions to lase, some of which are observed experimentally [11]. The $4^2D - 4^2P$ laser lines have not been found, however, and are suppressed possibly by mixing to the 4^2F states. Figure 4 shows a set of measured and computed pulse traces. Obviously the onset is described nicely by the model and although the sharp spiking structures are averaged out experimentally one can even recognize some corresponding kinks in the observed ir pulse traces. However, while the model predicts that the ir pulse should follow essentially the dye laser pulse the experiment shows a much earlier cutoff. This breakdown of the model is most probably due to the neglect of plasma formation. We may expect the electron densities to increase 1 to 2 orders of magnitude during 300 ns as seen for even much lower vapor densities by Carré et al. [7]. Roughly speaking the ir pulse will end when the population-depopulation rates of the 4^2P , 5^2S levels by electron collisions equal the energy pooling pump rate. One thus estimates that electron densities as low as 10^{12} cm^{-3} are sufficient to destroy the population inversion. This hypothesis is supported by a variety of complementary experimental observations [11] such as a decrease of the pulse width at high vapor densities and the study of direct two photon pumped ir laser emission where the ir pulse essentially follows the dye laser pulse. In this context it appears remarkable that in our experiment the ir laser pulse duration is essentially independent of the onset

time seeming to imply that the higher level population is locked to the onset of the ionization phenomena. However, at higher pressures the pulse duration gets shorter (compare Fig. 2e with Fig. 2a) underlining the faster ionization onset.

We conclude that if laser emission in a resonantly pumped Na-vapor based on the energy pooling process (2) is possible. It may serve as an effective tool to follow the initial kinetics of the plasma formation. For a quantitative understanding of the initial electron seed production the present work emphasizes the need to include energy pooling as a selective mechanism for population of higher atomic levels. Another result of this work is a warning not to neglect the possibility of superradiance [13] even in less dense vapors such as conventionally used in collision studies. Finally we remark that the described laser emission may be a promising new laser source if one can find a suitable way to prevent the plasmaformation. Possibly by appropriate gas admixtures ("electron quenchers") the efficiency may be increased. Furthermore the possibility of broad band excitation in the visible over several 100 Å seems attractive so that even flashlamps or solar light may come to mind.

References

1. See e.g.: M. Allegrini, G. Alzetta, A. Kopystynska, L. Moi, G. Orriols: *Lett. Nuovo Cimento* **31**, 78 (1981)
V. S. Kushawaha, J. J. Leventhal: *Phys. Rev. A* **25**, 570 (1982)
M. Allegrini, P. Biochi, L. Moi: *Abstract of the 8th ICAP*, Göteborg, 1982 (ed. by I. Lindgren, A. Rosén, S. Svanberg) **A88**
J. Huennekens, A. Gallagher: *Ibid.*, **A89**
J. Huennekens, A. Gallagher: To be published
J. Huennekens: Thesis, University of Colorado (1982)
2. W. H. Pence, S. R. Leone: *Electronic and Atomic Collisions*, ed. by N. Oda, K. Takayanagi (North-Holland, Amsterdam 1980) p. 773
3. S. E. Harris, R. W. Falcone, D. M. O'Brien: *Opt. Lett.* **7**, 397 (1982)
4. T. B. Lucatorto, T. J. McIlrath: *Appl. Opt.* **19**, 3948 (1980)
5. R. M. Measures, P. G. Cardinal, G. W. Schinn: *J. Appl. Phys.* **52**, 1269 (1981)
6. V. S. Kushawaha, J. J. Leventhal: *Phys. Rev. A* **25**, 346 (1981)
7. B. Carreé, F. Roussel, P. Breger, G. Spiess: *J. Phys.* **B14**, 4271 and 4289 (1981)
8. J. L. Le Gouet, J. L. Picqué, F. Willeumier, J. M. Bizau, P. Dhez, P. Koch, D. L. Ederer: *Phys. Rev. Lett.* **48**, 600 (1982)
9. H.-A. Bachor, M. Kock: *J. Phys.* **B14**, 2793 (1981)
10. W. Müller, I. V. Hertel: *Appl. Phys.* **24**, 33 (1981)
11. W. Müller, I. V. McClelland, I. V. Hertel: To be published
12. O. S. Heavens: *J. Opt. Soc. Am.* **51**, 1058 (1961)
13. M. Gross, C. Fabre, P. Pellet, S. Haroche: *Phys. Rev. Lett.* **36**, 1035 (1976)

INFRARED LASER EMISSION IN ATOMIC SODIUM VAPOR PUMPED BY COLLISION ASSISTED LASER EXCITATION

A collision-assisted two-step two-photon pump mechanism for generating a population inversion among the 5^2S and 4^2P levels in atomic sodium is reported. By tuning a pulsed dye laser to the 3^2P to 5^2S resonances IR laser emission on the $3.415\text{ }\mu\text{m}$ ($5^2S_{1/2}-4^2P_{3/2}$) and on the $3.408\text{ }\mu\text{m}$ ($5^2S_{1/2}-4^2P_{1/2}$) lines is observed. The conversion efficiency is estimated to be 5% and up to 5W IR peak power is observed in the present experimental setup.

In their original proposal for infrared (IR) and visible lasers Schawlow and Townes first suggested resonant optical pumping of atomic alkali vapors as a mechanism to generate a population inversion [1]. In the mean time, alkali dimers have proved to be efficient laser media in the visible and near infrared [2] and by using alkali atoms stimulated Raman scattering and various optical parametric mixing processes [3] have become powerful tools for down conversion of visible light into the IR region. But although alkali atoms are probably the most intensively studied objects in atomic physics [4], for sodium as an example only superradiance [5] and optically stimulated emission [6] after resonant excitation has been exploited up until now.

Recently, we have demonstrated two possibilities of creating a population inversion among higher excited atomic levels in a dense sodium vapor. Resonant excitation of the sodium 3^2P levels and subsequent energy pooling is one possible mechanism [8], direct two photon excitation 3^2S-5^2S another one [9]. In both cases, the $5^2S_{1/2}-4^2P_{3/2,1/2}$ transitions are observed to lase when studied in an IR laser resonator, however, with low efficiency only. In the first case competing ionization processes arise from the high density of excited 3^2P atoms and destroy the population inversion, while the latter mechanism is based on an only moderate excitation cross section, the intermediate 3^2P level being 364 cm^{-1} off resonance.

In the present paper we report a new and significantly more efficient two photon excitation mechanism to create a population inversion between the 5^2S and 4^2P levels by tuning the pump laser into resonance with the 3^2P-5^2S transitions. This process is similar to the light-induced collision used in a binary Ca-Sr vapour reported by Falcone et al. [7].

The experimental setup is similar to that described in refs. [8,9]. Briefly, an undercritically operated heat pipe oven with a vapor zone of effectively 4 cm length sealed by CaF_2 Brewster windows is mounted inside an IR laser resonator. The latter is formed by a gold mirror (3 m radius) and a dielectrically coated CdTe mirror (10 m radius, 30% reflectivity at $3.4\text{ }\mu\text{m}$) and has a length of 1.35 m. A flashlamp pumped rhodamine 6G dye laser with a pulse duration of $1\text{ }\mu\text{s}$, a linewidth of 0.6 cm^{-1} , a pulse energy up to 5 mJ and a beam waist of 0.3 cm is coupled into and out of the IR resonator by two Ge-plates set at Brewster angle for the IR radiation. A fast photodiode monitors the pump-laser while the IR laser output is detected by a cooled InSb detector with a risetime of 50 ns. The IR wavelengths are measured by a 0.5m grating monochromator. Intensity measurements are performed by a boxcar integrator and the time dependences of the output signals are recorded by an oscilloscope or alternatively by a transient digitizer averager combination.

IR laser emission is observed on the $3.415\text{ }\mu\text{m}$

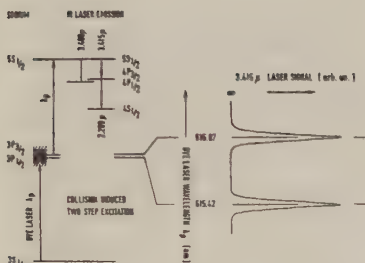


Fig. 1. Schematic illustration of the collision assisted two step laser excitation of the 5^2S level and the observed IR laser transitions (left side). IR output power of the 3.415 μm line as a function of pump laser wavelengths (right side).

($5^2S_{1/2} - 4^2P_{3/2}$) and on the 3.408 μm ($5^2S_{1/2} - 4^2P_{1/2}$) lines but also, on a much weaker level, the cascading 2.209 μm ($4^2P_{3/2} - 4^2S_{1/2}$) transition. These laser oscillations are observed when the pump laser is tuned on resonance with either of the two red $3^2P_{1/2,3/2} - 5^2S_{1/2}$ transitions at 615.42 and 616.07 nm, respectively. Fig. 1 shows a schematic of this excitation mechanism together with an experimental recording of the 3.415 μm IR output as a function of the pump laser wavelength*. Laser action is observed for sodium pressures in between a fraction of a mbar and some tens of mbars.

The dependence of the time integrated IR output power on the pump pulse energy follows for several orders of magnitude an essentially quadratic power law as shown in fig. 2 for a Na vapor pressure of 10 mbar. We thus conclude that the mechanism for the $5^2S_{1/2}$ excitation is really a two step process as proposed, the first step being the 3^2P excitation in the far red wing of the self broadened Na D-lines. (Similar IR output powers are obtained for 1 mbar of Na in the presence of 1000 mbar of Ar.) The 3^2P Na atoms excited in this collision assisted absorption process are

* Because of the mode structure and limited tunability of the pump laser the intensity ratio of the two lines seen in fig. 1 is of no physical significance. It depends on how well the frequency of one of the laser modes coincides with the collision broadened linewidth of the red $3^2P - 5^2S$ lines.

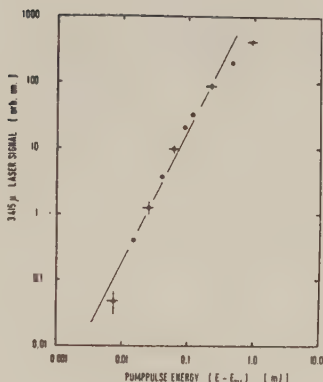


Fig. 2. Time integrated 3.415 μm ($5^2S_{1/2} - 4^2P_{3/2}$) laser output power as a function of pump pulse energy above threshold (0.01 mJ) showing a quadratic power law as indicated by the straight line.

then resonantly pumped in a second step to the 5^2S level.

It should be noted that the detuning off exact resonance for the first step is approximately 727 cm^{-1} while at a pressure of 10 mbar the line width of the self broadened Na D-lines is 1 cm^{-1} [10]. Assuming a lorentzian line profile one estimates that the 3^2S to 3^2P absorption coefficient at a wavelength of 616 nm is $4 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$. Thus at our experimental conditions roughly 2% of the pump laser light is absorbed in the first step. Experimentally, at this wavelength absorption due to nearby molecular lines prevents an exact determination of the total power fed into the laser medium. We thus assume the overall absorption in the proposed two step pump process to be a few percent corresponding to around 100 W for a typical dye laser output peak power of 4 kW. The corresponding experimentally observed IR laser output has a peak power of around 5W. Thus we conclude the IR laser to have an conversion efficiency of about 5% on the 3.415 μm line which has to be compared with an maximum possible efficiency of 9% for converting two visible photons of 616 nm into one infrared photon of 3.415 μm . In addition we observe the 3.408

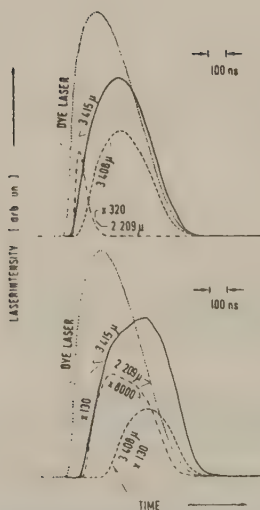


Fig. 3. Time dependence of the observed IR laser output pulses: $3.415 \mu\text{m } 5^2S_{1/2}-4^2P_{3/2}$ (full line), $3.408 \mu\text{m } 5^2S_{1/2}-4^2P_{1/2}$ (dashed line) and $2.209 \mu\text{m } 4^2P_{3/2}-4^2S_{1/2}$ (dashed dotted line) in comparison with the dye laser pump pulse (dotted line). The pump wave length is 616.07 nm , the pump pulse energy 1 mJ . Top part of the figure: 10 mbar Na and 1 mbar Ar , lower part: 1 mbar Na and 1 mbar Ar . Note the different relative intensities as indicated at the pulse traces referring to the $3.415 \mu\text{m}$ line in the top part.

$\mu\text{m } 5^2S_{1/2}-4^2P_{1/2}$ line with roughly half that power.

An even more detailed insight into the lasing process we obtain by a time dependent study. Fig. 3 shows pulse traces for the three IR laser transitions observed at two different Na vapor pressures. At 1 mbar (lower part of fig. 3) all three IR pulses follow essentially the pump laser pulse once threshold has been reached. Since the cross section for stimulated emission for the $5^2S_{1/2}-4^2P_{3/2}$ transition is twice that for the $5^2S_{1/2}-4^2P_{1/2}$ transition one expects the former process to reach threshold first, as observed. Before steady state can be reached this laser process populates the $4^2P_{3/2}$ level so that an inversion between $4^2P_{3/2}$ and $4^2S_{1/2}$ builds up immediately

which is sufficient to bring this transition above laser threshold as well. While at 1 mbar Na vapor pressure this cascading process is terminated only when the pump pulse ends, at 10 mbar it has a duration of less than 100 ns . We explain this behaviour by competing collision process which redistribute the population among the 4^2P and 3^2D levels*. These collisional losses of population in the 4^2P levels also explain the significantly lower IR output in the $2.209 \mu\text{m}$ cascade transition as compared to initial $5^2S_{1/2}-4^2P_{3/2}$ line. In contrast, the $5^2S_{1/2}-4^2P_{1/2}$ line has approximately half the power of the other doublet component for both Na pressures.

In conclusion we have demonstrated an efficient way to generate IR laser emission between higher levels in atomic sodium by a collision assisted two step laser excitation. It circumvents the difficulties arising from low excitation probabilities in direct two photon excitation processes as well as the problems originating from strong ionisation [12] due to excess presence of sodium 3^2P atoms in the energy pooling laser [8]. We have not attempted in the present work to optimise the ratio of IR laser output power to total pump pulse power. By increasing the length of the Na vapor zone and possibly by choosing suitable buffer gases one can hope to absorb a much larger fraction of the pump laser input without increasing the collisional destruction of the population inversion. 200 WIR output power appears feasible without great difficulties.

Partial support of this work by the Deutsche Forschungsgemeinschaft through Sfb 161 is greatly acknowledged. Stimulating discussions with G. Jamieson have been very helpful.

* The energy gap between the 4^2P and the 3^2D levels is 1097 cm^{-1} corresponding to roughly $2kT$. It is interesting to note that also for the 5^2S and 4^2D lines with an even larger mismatch of the energies (1348 cm^{-1}) strong collisional mixing is observed in our experiment by visual observation of the 4^2D-3^2P fluorescence perpendicular to the IR resonator. Similar observations in flames [11] support our findings.

References

- [1] A.L. Schawlow and C.H. Townes, Phys. Rev. 112 (1958) 1940.

- [2] H. Welling and B. Wellegehausen, in: *Laserspectroscopy III*, eds. J.L. Hall and J.L. Carlson, Springer Series in Optical Sciences, Vol. 7 (Springer, Berlin, 1977) p. 365.
- [3] See e.g. J.J. Wynne, P.P. Sorokin, in: *Topics in applied physics*, Vol. 61 (Springer, Berlin, 1977) p. 159; C. Hanna, M.A. Yarabich and D. Cotter, *Nonlinear optics of free atoms and molecules*, Springer Series in Optical Sciences, Vol. 17 (Springer, Berlin, 1979).
- [4] W.C. Stwalley and M.E. Koch, *Opt. Eng.* 19 (1980) 71; A. Kopystynska and L. Moi, *Phys. Rep.* 92 (1982) 135.
- [5] M. Gross, C. Fabre, P. Pellet and S. Haroche, *Phys. Rev. Lett.* 36 (1976) 1035.
- [6] W. Hartig, *Appl. Phys.* 15 (1978) 472.
- [7] R.W. Falcone, W.R. Green, J.C. White, J.F. Young and S.E. Harris, *Phys. Rev. A* 15 (1977) 1333.
- [8] W. Mueller, J.J. McClelland and I.V. Hertel, *Appl. Phys. B*, to be published.
- [9] W. Mueller and I.V. Hertel, *Appl. Phys.* 24 (1981) 33.
- [10] J. Huennekens and A. Gallagher, to be published.
- [11] C.A. van Dijk, Ph.D. thesis, Rijksuniversiteit Utrecht (1978).
- [12] T.B. Lucatorto and T.J. McIlrath, *Appl. Optics* 19 (1980) 3948.

● LITERATURVERZEICHNIS ●

- /AAK 76/ M.Allegriani, G.Alzetta, A.Kopystynska, L.Moi: Opt. Com. 19 (1976) 96
- /AAK 77/ M.Allegriani, G.Alzetta, A.Kopystynska, L.Moi, G. Orriols: Opt. Com. 22 (1977) 329
- /ABM 83/ M.Allegriani, P.Bicchi, L.Moi: Phys. Rev. A27 (1983)
- /Aym 78/ M.Aymar: J. Phys. B 11 (1978) 1413
- /BBW 83/ R.Bonanno, J.Boulmer, J.Weiner: to be publ. (1983)
- /BCG 77/ F.Biraben, B.Cagnac, E.Giacobino, G.Grynberg: J. Phys. B 10 (1977) 2369
- /Bez 78/ N.N.Bezuglov: Opt. Spectr. (1978) 246
- /BHo 76/ R.G.Bray, R.M.Hochstrasser: Mol. Phys. 31 (1976) 1199
- /Bio 76/ M.A.Biondi: in Principles of Laser Plasmas, ed. by G.Befeki, Wiley, N.Y. (1976) 125
- /BLe 78/ G.H.Bearman, J.J.Leventhal: Phys. Rev. Lett. 41 (1978) 1227
- /BRT 82/ M.L.Berre, E.Ressayre, A.Tallet: Phys. Rev. A25 (1982) 1604
- /BRV 82/ J.T.Bahns, A.R.Rajaei-Rizi, K.K.Verma, F.B.Orth, W.C.Stwalley: in Proc. of Int. Conf. on Lasers '82 (1982)
- /CBL 82/ M.Cheret, L.Barbier, W.Lindinger, R.Deloche: J. Phys. B 15 (1982) 3463
- /Chi 76/ S.W.Chi: Heat Pipe Theory and Practice, McGraw-Hill, N.Y. (1976)
- /CHT 77/ D.Cotter, D.C.Hanna, W.H.W.Tuttlebee, M.A. Yuratich: Opt. Com. 22 (1977) 190
- /CJM 81/ N.W.Carlson, K.M.Jones, G.P.Morgan, A.L.Schawlow, A.J.Taylor, H.-R.Xia, G.-Y.Yan: in Laserspectroscopy V, Springer Series in Optical Sciences, Vol. 30, Springer, Berlin (1981)
- /Cor 77/ A.Corney: Atomic and Laser Spectroscopy, Clarendon Press, Oxford (1977)
- /Cot 65/ T.P.Cotter: Los Alamos Scient. Lab. Rep. (1965)

- /CRB 81a/ B.Carre, F.Roussel, P.Breger, G.Spiess: J. Phys.
B 14 (1981) 4271
- /CRB 81b/ B.Carre, F.Roussel, P.Breger, G.Spiess: J. Phys.
B 14 (1981) 4289
- /CSD 81/ M.Cheret, A.Spielfiedel, R.Durand, R.Deloche: J.
Phys. B 14 (1981) 3953
- /CTJ 81/ N.W.Carlson, A.J.Taylor, K.M.Jones, A.L.Schawlow:
Phys. Rev. A24 (1981) 822
- /CWM 81/ P.G.Cardinal, P.L.Wizinowich, R.M.Mearures: J.
Quant. Spectr. Radiat. Transf. 25 (1981) 537
- /Dai 77/ J.W.Daily: Appl. Opt. 16 (1977) 2322
- /Dem 81/ W.Demtröder: Laser Spectroscopy, Springer, Berlin
(1981) 595
- /DLG 80/ P.L. DeVries, K.S.Lam, T.F.George: in Electronic
and Atomic Collisions, ed. by W.Oda and K.Taka-
yanagi, North-Holland (1980)
- /DMZ 69/ W.Demtröder, M.McClintock, R.N.Zare: J. Chem. Phys.
51 (1969) 5495
- /DRe 76/ P.Dunn, D.A.Reay: Heat Pipes, Pergamon, Oxford
(1976)
- /EGa 72/ E.A.Enemark, A.Gallagher: Phys. Rev. A6 (1976) 192
- /FGW 77/ R.W.Falcone, W.R.Green, J.C. White, J.F. Young,
S.E Harris: Phys. Rev. A15 (1977) 1333
- /GCE 64/ G.M.Grover, T.P.Cotter, G.F.Erckson: J. Appl.
Phys. 35 (1964) 1990
- /GCG 81/ R.Granier, G.Charton, J.Granier: J. Quant. Spectr.
Rad. Transf. 26 (1981) 71
- /Gel 77/ S.Geltman: J. Phys. B 10 (1977) 3057
- /Gel 81/ S.Geltman: Phys. Lett. 81A (1981) 27
- /GFB 76/ M.Gross, C.Fabre, P.Pellet, S.Haroche: Phys. Rev.
Lett. 36 (1976) 1035
- /GHo 77/ A.Gallagher, T.Holstein: Phys. Rev. A16 (1977)
2413
- /GPW 82/ J.L.LeGouet, J.L.Picque, F.Wuilleumier, J.M.Bizeau,
P.Dhez, P.Koch, D.L.Ederer: Phys. Rev. Lett. 48
(1982) 600
- /GLy 75/ Y.B.Golubovski, R.I.Lyagushchenko: Opt. Spectr.

(1975) 628

- /GSh 81/ A.P.Gavriluk, N.Y.Shaparev: Opt. Com. 29 (1981) 379
- /Har 78/ W.Hartig: Appl. Phys. 15 (1978) 472
- /HCW 78/ A.V. Hellfeld, J.Caddik, J. Weiner: Phys. Rev. Lett. 40 (1978) 1369
- /Hea 61/ O.S.Heavens: J. Opt. Soc. Am. 51 (1961) 1058
- /Her 80/ I.V.Hertel: in Electronic and Atomic Collisions, ed by N.Oda and K. Takayanagi, North-Holland (1980)
- /Her 81/ I.V.Hertel: in The Excited State in Chemical Phys., Vol.2, ed. by J.W.McGowan, Wiley, N.Y. (1981) 341
- /HFO 82/ S.E.Harris, R.W.Falcone, D.M.O'Brien: Opt. Lett. 7 (1982) 397
- /HGa 83a/ J.P.Huennekens, A.Gallagher: Phys. Rev. A27 (1983) 771
- /HGa 83b/ J.P.Huennekens, A.Gallagher: to be publ.
- /HHB 76/ M.A.Henesian, R.L.Herbst, R.L.Byer: J. Appl. Phys. 47 (1976) 1515
- /HHe 79/ K.P.Huber, G. Herzberg: Molecular Spectra and Molecular Structure, van Nostrand, N.Y. (1979)
- /HHu 75/ R.D.Hudson, J.W.Hudson: Infrared Detectors, Halsted (1975)
- /HJa 72/ M.M.Hessel, P.Jankowski: J. Appl. Phys. 43 (1972) 209
- /HLi 80/ D.S.Y.Hsu, M.C.Lin: J. Chem. Phys. 73 (1980) 2188
- /Hol 47/ T.Holstein: Phys. rev. 72 (1947) 1212
- /Hol 51/ T.Holstein: Phys. Rev. 83 (1951) 1159
- /Hue 82/ J.P.Huennekens: doctoral thesis, Univ. of Colorado, Boulder (1982)
- /HYC 79/ C.Hanna, M.A.Yaratich, D.Cotter: in Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules, Springer Series in Optical Sciences, Vol. 17, Springer, Berlin (1979)
- /ISY 82/ M.N.Ivanowskii, V.P.Sorokin, I.V. Yagodkin: The Physical Principles of Heat Pipes, Clarendon, Oxford (1982)

- /IUM 76/ H.Itoh, H.Uchiki, M.Matsuoka: Opt. Com. 18 (1976) 271
- /JVa 79/ A.deJong, F.v.Valk: J.Phys. B 12 (1979) L561
- /KKO 78/ A.Kopystynska, P.Kowolczyk: Opt. Com. 25 (1978) 351
- /KLe 80/ V.S.Kushawaha, J.J.Leventhal: Phys. Rev. A22 (1980) 2468
- /KLe 82/ V.S.Kushawaha, J.J.Leventhal: Phys. Rev. A25 (1982) 570
- /KLe 82a/ V.S.Kushawaha, J.J.Leventhal: Phys. Rev. A25 (1982) 346
- /KLi 66/ H.Kogelnik, T.Li: Proc. IEEE 54 (1966) 1312
- /KMo 82/ A.Kopystynska, L.Moi: Phys. Rep. 92 (1982) 135
- /KMü 69/ W.Kleen, R.Müller: Laser, Springer, Berlin (1969)
- /Kow 79/ P.Kowalczyk: Chem. Phys. Lett. 68 (1979) 203
- /KRO 80/ D.D.Konowalow, M.E.Rosenkrantz, M.L. Olson: J. Chem. Phys. 72 (1980) 2612
- /KSc 81/ D.J.Krebs, L.D.Scheerer: J. Chem. Phys. 75 (1981) 3340
- /KSS 80/ J.Krasinski, T.Stacewicz, C.R. Stroud Jr.: Opt. Com. 33 (1980) 158
- /KSV 77/ A.Klucharev, V.Sepman, V.Vunjovic: J. Phys. B 10 (1977) 715
- /KVS 77/ M.E.Koch, K.K.Verma, C.Stwalley: J. Opt. Soc. Am. 70 (1977) 627
- /LBR 76/ A.M.F.Lau, W.K.Bischel, C.K.Rhodes, R.M.Hill: Appl. Phys. Lett. 29 (1976) 245
- /LDD 76/ J.Lerjan, K.K.Docken, A.Dalgarno: Chem. Phys. Lett. 38 (1976) 401
- /LFG 78/ L.K.Lam, T.Futjimoto, A.Gallagher, M.M. Hessel: J. Chem. Phys. 68 (1978) 3553
- /LGH 77/ L.K.Lam, A.Gallagher, M.M.Hessel: J. Chem. Phys. 66 (1977) 3550
- /LMc 76/ T.B.Lucatorto, T.J.McIlrath: Phys. Rev. Lett. 37 (1976) 428
- /LMc 80/ T.B.Lucatorto, T.J.McIlrath: Appl. Opt. 19 (1980) 3948

- /Lou 73/ R.Loudon: The Quantum Theory of Light, Clarendon, Oxford (1973)
- /LVM 77/ S.G.Leslie, J.T.Verdeyen, W.S.Millar: J. Appl. Phys. 48 (1977) 4444
- /Mar 68/ G.V.Marr: Photoionization Processes in Gases, Academic, N.Y. (1968)
- /McA 72/ T.J.McIlrath, J.L.Carlsten: Phys.Rev. A6 (1972) 1091
- /McA 81/ R.M.Measures, P.G.Cardinal: Phys.Rev. A23 (1981) 804
- /MCS 81/ R.M.Measures, P.G.Cardinal, G.W.Schinn: J. Appl. Phys. 52 (1981) 1269
- /Mea 77/ R.M.Measures: J. Appl. Phys. 48 (1977) 2673
- /Mey 80/ Y.H.Meyer: Opt. Com. 34 (1980) 439
- /MHe 81/ W.Müller, I.V.Hertel: Appl. Phys. 24 (1981) 33
- /MHe 83/ R.M.Measures, H.Herchen: J. Quant. Spectr. Radiat. Transf. 29 (1983) 9
- /Mil 26/ E.Milne: J. London Math. Soc. 1 (1926) 1
- /Mor 83/ W.L.Morgan: Appl. Phys. Lett. 42 (1983) 790
- /Mze 34/ A.C.G.Mitchell, M.W. Zemansky: Resonance Radiation and Excited Atoms, Cambridge, London (1934)
- /Nes 63/ A.N.Nesmayonov: Vapour Pressures of the Chemical Elements, Amsterdam (1963)
- /PDW 80/ P.Polak-Dingels, J.F.Delpech, J.Weiner: Phys. Rev. Lett. 44 (1980) 1663
- /PHA 78/ H.T.Powell, A.U.Hazi: Chem. Phys. Lett. 59 (1978) 71
- /PKr 68/ J.Pitre, L.Krause: Can. J. Phys. 46 (1968) 125
- /PLe 80/ W.H.Pence, S.R.Leone: In Electronic and Atomic Collisions, ed. by N.Oda and K.Takayanagi, North-Holland, Amsterdam (1980) 773
- /PLe 81/ W.H.Pence, S.R.Leone: J. Chem.Phys. 74 (1981) 5707
- /PWL 76/ A.B.Peterson, C.Wittig, S.R.Leone: J. Appl. Phys. 47 (1976) 1051
- /RCb 81/ F.Roussel, B.Carre, P.Breger, G.Spiess: J. Phys. B 14 (1981) L313
- /RBS 80/ F.Roussel, P.Breger, G.Spiess, C.Manus, S.Gelt-

This work reports about infrared laser emission in optical pumped sodium vapor.

The excitation of the metal vapor produced in an heat-pipe oven is performed by a flashlamp-pumped dye laser with wavelengths in the region between 575 and 616 nm. The resulting ir laser emission with discrete wavelengths between 2 and 5 μm arises from transitions between higher lying electronic states of both the sodium atom and molecule.

In detail has been studied:

- molecular multiline laser emission with wavelengths in the 4 to 5 μm region between vibronic states of higher lying $^1\Sigma_g^+$ or $^1\Pi_g$ states and the $C^1\Pi_u$ state, pumped by direct two-photon excitation assisted by resonant intermediate vibronic states of the $A^1\Sigma_u^+$. This laser emission is observed at many excitation wavelengths distributed between 575 and 616 nm.
- atomic laser emission: mainly on the $5s_{1/2} - 4p_{3/2}$ transition at 3.415 μm , but also on the $5s_{1/2} - 4p_{1/2}$ and on the $4p_{3/2} - 4s_{1/2}$ cascade transition (at 3.408 and 2.206 μm). This laser action is observed if the 5s state is populated by:
 - direct two-photon excitation (3s-5s) at a pump wavelength of 602.23 nm.
 - collision assisted two step two-photon excitation (3s-5s) at pump wavelengths resonant with the $3p_{1/2,3/2} - 5s_{1/2}$ transitions.
 - resonant excitation of the 3p states followed by energy pooling collisions.

The experimental results are compared with performed kinetic laser models.

(further information for the english speaking reader: see appendix (Anhang A5))

- man: J. Phys. B 13 (1980) L631
- /RJG 62/ P.Rabinowitz, S.Jakobs, G.Gould: Appl. Opt. 1
(1962) 513
- /Rot 76/ A.Roth: Vacuum Technology, North-Holland (1976)
336
- /SBL 81/ A.Sharma, N.D.Bhaskar, Y.Q.Lu, W.Happer: Appl.
Phys. Lett. 39 (1981) 209
- /SBR 75/ SBRC Brochure: Santa Barbara Research Center, Ca-
lifornia (1975)
- /Sha 81/ N.Y. Shaparov: Sov. Phys. JETP 53 (1981) 487
- /Sch 76/ G.J.Schulz: in Principles of Laser Plasmas, ed.
by G.Befeki, Wiley, N.Y. (1976) 33
- /Sch 77/ M.F.H. Schuurmans: Phys. Lett. 61A (1977) 445
- /SGN 80/ A.V.Smith, J.E.M.Goldsmith, D.E.Nitz, S.J.Smith:
Phys. Rev. A22 (1980) 577
- /Sie 71/ A.E.Siegman: An Introduction to Lasers and Masers,
McGraw-Hill, N.Y. (1971)
- /SKl 80/ C.H.Skinner, P.D.Kleiber: Phys. Rev. A21 (1980)
151
- /SKo 80/ W.C.Stwalley, M.E.Koch: Opt. Engineering 19 (1980)
71
- /SLa 71/ P.P.Sorokin, J.R.Lankard: J. Chem. Phys. 54 (1971)
2184
- /STo 58/ A.L.Schawlow, C.H.Townes: Phys.Rev. 112 (1958)
1940
- /THa 77/ A.C.Tam, W.Happer: Opt. Com. 21 (1977) 403
- /Tho 74/ A.P.Thorne: Spectrophysics, Chapman and Hall, Lon-
don (1974)
- /TJS 81/ A.J.Taylor, K.M.Jones, A.L. Schawlow: Opt. Com.
39 (1981) 47
- /vTr 76/ C.vanTrigt: Phys. Rev. A13 (1976) 726
- /VCo 69/ C.R.Vidal, J.Cooper: J. Appl. Phys. 40 (1969) 3370
- /VHa 71/ C.R.Vidal, F.B.Haller: Rev. Sci. Instr. 42 (1971)
1779
- /VHe 72/ C.R.Vidal, M.M.Hessel: J. Appl. Phys. 43 (1972)
2776
- /Vid 73/ C.R.Vidal: J. Appl. Phys. 44 (1973) 2225

- /VNT 81/ A.Valence, Nguyen Tuan Q.: Phys. Lett. 82A (1981) 116
- /VVS 82/ K.KVerma, T.H.Vu, W.C.Stwalley: J. Molec. Spectr. 91 (1982) 325
- /Wel 81/ B.Wellegehausen: IEEE J. Quant. Electr. QE-15 (1979) 1108
- /Woe 76/ J.P.Woerdman: Chem. Phys. Lett. 43 (1976) 279
- /Woe 78/ J.P.Woerdman: Phys. Lett 69A (1978) 18
- /Woe 78a/ J.P.Woerdman: Opt. Com. 26 (1978) 216
- /Woe 79/ J.P.Woerdman: Opt. Com. 28 (1979) 69
- /Woo 05/ R.W.Wood: Phil. Mag. 10 (1905) 513
- /WSF 77/ B.Wellegehausen, S.Shadin, D.Friede, H.Welling: Appl. Phys. 13 (1977) 97
- /WSM 69/ W.L.Wiese, M.W.Smith, B.M.Miles: Atomic Transition Probabilities, Vol II, NSRDS-NBS 22 (1969)
- /WSo 77/ J.J.Wynne, P.P.Sorokin: in Nonlinear Infrared Generation, Topics in Applied Physics, Vol 16, ed. by Y.R.Shen, Springer, Berlin (1977) 159
- /WPo 81/ J.Weiner, P.Polak-Dingels: J. Chem. Phys. 74 (1981) 508
- /Yar 75/ A.Yariv: Quantum Electronics, Wiley, N.Y. (1975)
- /YLG 77/ J.M.Yuan, J.R.Laing, T.F.George: J. Chem. Phys. 66 (1977) 1107

Allen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben, möchte ich an dieser Stelle danken.

Den Mitgliedern der Arbeitsgruppe Hertel, vor allem den Herren Dr. A. Stamatovic, Dr. H. Hofmann, Dr. H. Hermann, Dr. G. Jamieson und Dr. W. Kamke, möchte ich für wertvolle Diskussionen Dank sagen.

Besonders fruchtbar war die Zusammenarbeit mit Herrn Jabez McClelland, der für ein halbes Jahr als Gast am Experiment mitwirkte. Unvergessen bleiben die tiefgehenden, mit ihm geführten Diskussionen.

Schließlich gilt mein ganz besonderer Dank dem Betreuer dieser Arbeit, Herrn Prof. Dr. I.V. Hertel, für sein reges Interesse während ihres gesamten Verlaufs.

Besonders herzlich aber möchte ich meiner Frau danken für all die Hilfe, vor allem in den schwierigen Phasen dieser Arbeit.

LEBENS LAUF

Name: Werner Müller

Geburtsdatum: 17.7.1951

Geburtsort: Liebsthal/Pfalz

Eltern: Alfred Müller
Traude Müller, geb. Lenz

Familienstand: verheiratet seit 1977
mit Ursula Müller, geb. Bender
ein Kind

Ausbildung: 1958 - 1966: Besuch der Volksschule in
Liebsthal und Wahnwegen
1966 - 1971: Besuch des staatlichen
Aufbaugymnasiums in Ottweiler/Saar
1971: Abitur

Okt. 1971 - Jan. 1977: Studium der Physik
an der Universität Kaiserslautern
Dez. 1973: Vordiplom
Mai 1975 - Juni 1976: Diplomarbeit in der
Arbeitsgruppe Prof. Dr. Hertel
Jan. 1977: Diplom

Feb. 1977 - Nov 1978: wissenschaftlicher
Mitarbeiter an der Universität Kaisers-
lautern
seit Dez. 1978: wissenschaftlicher Assis-
tent an der Freien Universität Berlin in
der Arbeitsgruppe von Herrn Prof. Dr.
Hertel

